



THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)

Présentée et soutenue par :

Pierre-Yves SOLANE

le lundi 10 décembre 2012

Titre :

Spectroscopie Optique du Graphite/Graphène
sous Champs Mégagauss

École doctorale et discipline ou spécialité :

ED SDM : Physique de la matière - CO090

Unité de recherche :

LNCMI - UPR 3228

Directeur(s) de Thèse :

Oliver Portugall et Geert Rikken

Jury :

Wolfgang Bacsa

Michael Von Ortenberg

Piotr Kossacki

Benoit Jouault

Professeur

Professeur

Professeur

Chargé de Recherche

Président

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

à la diaspora soviétique) pour m'avoir fait découvrir que tous les russes ne s'embrassaient pas sur la bouche en jetant leur verre et ne buvaient pas tous de la vodka (enfin ça c'est moins sûr !). Merci à Dave The Beef pour son soutien (tant au niveau de la thèse que de la rixe nocturne toulousaine) et à l'éternel thésard Xavier Fabrèges pour son introduction (oh oui !) dans le monde de la pomme.

Je tiens à remercier solennellement, Robin J. Nicholas pour ces merveilleuses périodes de mesures, d'analyses et pour toute sa pédagogie.

Enfin, un très grand merci au couple polono-rosbeef, Paulina et Duncan, sans qui j'aurais mis au moins dix ans pour finir le manuscrit !! Encore merci pour tous ces moments partagés.

Pour finir, je remercie Isabelle pour avoir partagé avec moi la vie toulousaine et pour son soutien pendant toutes ces années.

Table des matières

1	Le générateur Mégagauss	1
1.1	Les champs magnétiques intenses	1
1.1.1	Les champs statiques :	1
1.1.2	Les champs pulsés :	2
1.1.3	Les champs Mégagauss :	3
1.2	Approche théorique de la production de champ magnétique Mégagauss . . .	5
1.2.1	Force et pression mise en jeu	5
1.2.2	Dynamique de la bobine	8
1.2.3	Circuit RLC	10
1.3	Descriptif de l'installation	12
1.3.1	Structure	12
1.3.2	Production de champs Mégagauss	15
1.4	Contraintes et Perturbations liées aux champs Mégagauss	16
1.4.1	Acquisition	17
1.4.2	Propriétés physiques de l'échantillon	19
1.4.3	Phénomènes mécaniques	20
1.4.4	Reproductibilité et Hystérèse	22
1.5	Techniques de base pour la mesure sous champs Mégagauss	24
1.5.1	Mesure du champ magnétique	24
1.5.2	Cage de Faraday	28
2	Techniques expérimentales	33
2.1	Spectroscopie optique	33
2.1.1	Spectroscopie large-bande (visible, proche infrarouge)	34
2.1.2	Spectroscopie Monochromatique	36
2.2	Les échantillons	40
2.2.1	Graphite cristallin	40
2.2.2	Graphène épitaxié sur Carbure de Silicium (SiC)	42
3	Propriétés du graphène/graphite	47
3.1	Les propriétés du graphène	47
3.1.1	La structure de bande	47
3.1.2	Niveaux de Landau	49
3.1.3	Transitions optiques et règles de sélection	50
3.2	Les propriétés du graphite	52

3.2.1	La structure de bande	52
3.2.2	Niveau de Landau :	55
3.2.3	Transitions optiques et règles de sélection	57
4	Origine de l'asymétrie électron-trou dans le graphite	61
4.1	Spectroscopie visible et proche-infrarouge : Clivage des transitions	62
4.1.1	Graphite en flocons : Modèle EBM	62
4.1.2	Graphite cristallin : modèle SWM avec terme de l'énergie cinétique	63
4.2	Spectroscopie monochromatique : Asymétrie au point K	67
4.3	Transitions $0 \rightarrow 1$ et $-1 \rightarrow 0$ au point K : Niveau de Fermi et clivage de spin	69
4.4	Conclusion	72
5	Etude de la dispersion relativiste dans le graphite sous champ magnétique Me-	75
	gagauss	
5.1	Résultats de magnéto-transmission : Observation de trois types de transitions	76
5.2	Fréquence des transitions : Etude de la dispersion relativiste	81
5.3	Modélisation avec le modèle du bicouche effectif (EBM)	86
5.4	Largeurs des transitions dans le graphite :	91
5.5	Conclusion :	93
6	Etude des échantillons de graphène épitaxié	95
6.1	Transitions aux points K du graphène :	95
6.2	Comparaison graphène/graphite	97
6.2.1	Décomposition du graphite : Contribution majoritaire des fermions de Dirac avec masse	99
6.2.2	Décomposition du graphène : Contribution majoritaire des fermions de Dirac sans masse	99
6.2.3	Asymétrie de la transition interbande $0 \rightarrow 1$ et $1 \rightarrow 0$ dans le graphène	102
6.3	Conclusion	102
	Conclusion	105
	Annexe	107
	Liste des publications	111
	Bibliographie	113

Le générateur Mégagauss

Le générateur Mégagauss du LNCMI, déplacé à Toulouse en 2006, utilise la technique de décharge rapide dans des "bobine monospire". Cette installation a été développée auparavant à l'université Humboldt de Berlin [Portugall O. 1997, Portugall O. 1999].

Dans ce chapitre, j'introduirai les différentes techniques des champs magnétiques intenses, puis je calculerai les différents ordres de grandeurs mis en jeu qui permettront de démontrer l'importance et les caractéristiques de chaque composant du générateur. Puis je parlerai des contraintes et perturbations liées à la production de champ Mégagauss et des solutions apportées. Enfin, j'exposerai les différents champs magnétiques disponibles avec cette installation.

1.1 Les champs magnétiques intenses

Tout d'abord, il est nécessaire de clarifier les termes et les dimensions du magnétisme. L'unité du système international (SI) décrit l'induction magnétique B en [T] en fonction du champ magnétique H et de l'aimantation M en [A.m⁻¹]. Or, les matériaux étudiés dans cette thèse sont très faiblement para- ou diamagnétiques. Il en résulte que l'induction magnétique B peut être relié, en bonne approximation, directement à H par :

$$B = \mu_0 H \quad (1.1)$$

Où $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ H.m⁻¹ est la perméabilité magnétique du vide.

Dans cette thèse, le terme champ magnétique sera associé à l'induction magnétique B .

1.1.1 Les champs statiques :

Ils permettent de créer des champs de l'ordre de la minute jusqu'à plusieurs jours. Le record actuel de 45 Tesla (NHMFL-DC, Tallahassee) a été obtenu dans une bobine hybride [Miller 2003]. On utilise une bobine supraconductrice qui entoure une bobine résistive. Les champs statiques utilisant les bobines résistives, mettent en jeu de très grandes puissances d'alimentation électrique (~ 20 MW) et aussi de refroidissement (~ 100 l d'eau/s).

Ce sont des installations qui demandent beaucoup d'équipements et de surface. On trouve aujourd'hui les grands principaux laboratoires aux États-Unis, en France, au Japon, aux Pays-Bas et en Chine. La limite des champs statiques réside sur la capacité à compenser les contraintes mécaniques liées aux forces de Lorentz et à évacuer la chaleur produite par effet Joule dans la bobine résistive et à prendre en compte la densité maximum de courant et le champ critique au-dessus desquels la supraconductivité est détruite dans les bobines supraconductrices.

Pour surmonter l'**échauffement** de la bobine et ainsi augmenter le champ magnétique, on utilise la technique du champ pulsé.

1.1.2 Les champs pulsés :

Ils permettent de créer des champs de l'ordre de la milliseconde à la seconde. Le champ magnétique le plus élevé obtenu à ce jour, sans destruction de la bobine, est de 100.75 T, atteint au NHMFL-PF (Los Alamos) en mars 2012 [Jaime 2012]. Le principe est de réduire le temps de passage du courant dans le conducteur. On emmagasine la chaleur produite par effet Joule dans le conducteur et on arrête la décharge avant la destruction irréversible de la bobine. La chaleur est ensuite dissipée dans un cryostat à azote liquide. La limite physique est la **contrainte mécanique**, due à la pression magnétique, exercée sur la bobine. On peut augmenter la limite mécanique de la bobine par l'utilisation de conducteurs plus résistants (Nb-Cu, Glidcop...) et l'insertion de renforts, couches de fibres, entre les fils [Li 1998]. On utilise le banc de condensateurs et la roue à inertie (dynamo) pour stocker l'énergie. Le banc de condensateurs est la source de stockage la plus couramment utilisée. Il permet de stocker l'énergie (kJ à MJ) en fonction de la capacité et de la tension de charge, $E = \frac{1}{2}CU^2$. La valeur maximale du champ magnétique résulte d'un compromis entre plusieurs paramètres (taille du trou, contrainte mécanique sur la bobine, homogénéité spatiale du champ, durée d'impulsion...) pour une énergie donnée.

Ce type de production de champs magnétiques permet de créer des champs intenses dans des installations compactes avec un coût de fonctionnement relativement faible. Le défaut réside dans la nécessité d'avoir des systèmes d'acquisition très rapides et de maîtriser les conséquences des tensions induites pendant le tir.

Les plus grands laboratoires de champs pulsés se trouvent aux États-Unis, en France, au Japon, en Allemagne, et en Chine.

Pour s'affranchir de la contrainte liée à la résistance mécanique des conducteurs, l'utilisation de l'inertie devient indispensable pour atteindre des champs magnétiques plus élevés (>100 T).

1.1.3 Les champs Mégagauss :

On les appelle champs Mégagauss du fait de l'unité utilisée (1 MG=100 T). Cette technique utilise l'inertie des conducteurs pour contrer les forces magnétiques. La limite intrinsèque de ces générateurs est donc la **vitesse**. Le temps caractéristique de cette destruction est de quelques microsecondes.

On peut classer les champs Mégagauss en deux sous-catégories :

1.1.3.1 La compression de flux :

Cette méthode repose sur le principe de conservation du flux magnétique. Un flux magnétique est piégé dans un anneau dont le diamètre est réduit rapidement. Le flux étant relié à la surface et au champ magnétique ($\phi = B \times \text{Surface}$), pour conserver le flux, le champ magnétique augmente proportionnellement à la réduction de la surface. Cette technique requiert l'utilisation d'un mécanisme de mise en mouvement (implosion) qui s'oppose à la pression magnétique.

On distingue deux façons pour créer l'implosion :

La compression électromagnétique de flux (anglais **EMFC**) fonctionne grâce à un anneau placé très près à l'intérieur d'une bobine parcourue par un courant. On utilise la pression magnétique exercée par la bobine sur l'anneau pour le faire imploser. Le record de cette première méthode est de 730 Tesla [S. Takeyama 2010].

La compression explosive dirigée de flux (anglais **EDFC**) fonctionne grâce à l'utilisation d'une charge explosive. Les générateurs de nouvelles générations, dits à cascade, mettent en jeu plusieurs générateurs créant des champs magnétiques de plus en plus importants grâce au courant produit par le générateur précédent. Le record de cette deuxième méthode est de 2800 Tesla [Boyko 1998].

La compression de flux permet d'atteindre les champs magnétiques les plus extrêmes produits sur terre mais sa violence et sa complexité entraînent une destruction systématique des échantillons et une difficile reproductibilité. Cette technique est adaptée pour les expériences à tirs uniques.

Pour avoir une reproductibilité et effectuer des expériences multi-tirs sur le même échantillon, la technique des bobines mono-spines est préférable.

1.1.3.2 Les bobines mono-spines :

Ces générateurs sont appelés bobine mono spire (**BMS**), en anglais single-turn-coil (**STC**), car ils mettent en jeu une bobine de forme géométrique simple ayant un seul tour. La direction de la force radiale exercée lors du passage du courant permet de conserver intact le volume expérimental (échantillon, cryostat, sonde...) dans la majorité des tirs. Il suffit donc de changer la bobine pour pouvoir effectuer une nouvelle expérience. Cette propriété

permet aux générateurs monospires une bonne reproductibilité et un temps de latence très court (<1 heure) entre deux tirs.

Le générateur **Mégagauss** du LNCMI se classe dans ce type de technique. Il fait partie des trois installations de champs semi-destructifs dédiées aux expériences de spectroscopie de la matière condensée (Etats-Unis, Japon). Le record de champ magnétique (non utilisable pour des mesures sur échantillon) a été atteint par Shearer en 1969 avec un champ mesuré de 355 T [Shearer 1969].

Pour des expériences physiques, le volume expérimental est d'environ 1 cm^3 pour des champs atteignant les 200 Teslas.

Le mode de fonctionnement de ce générateur sera approfondi dans la prochaine partie.

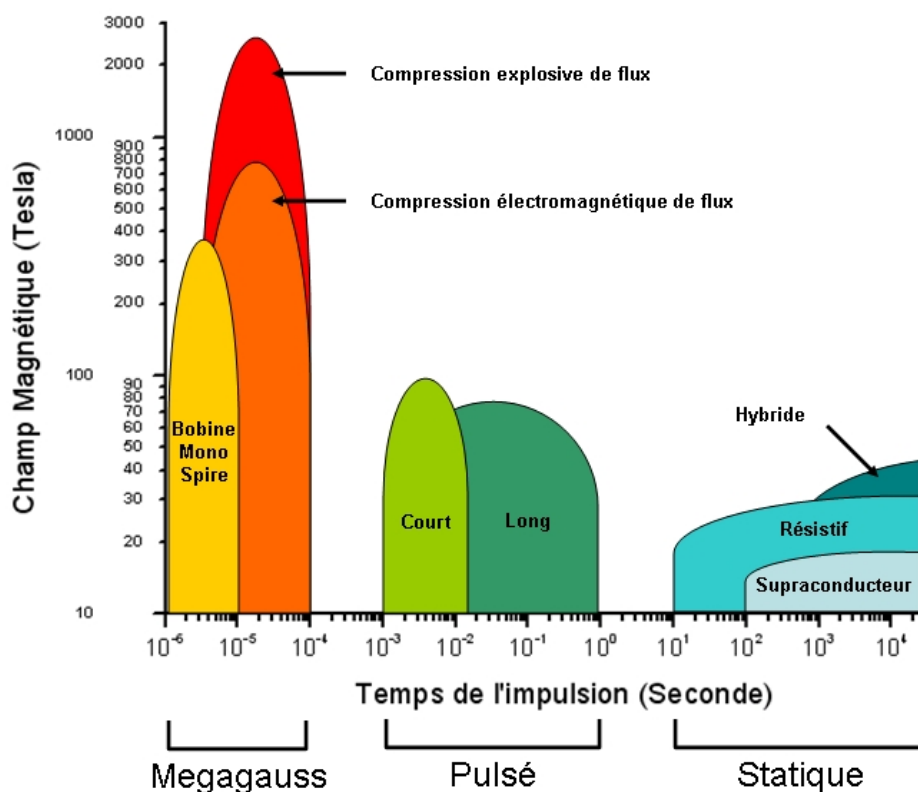


FIGURE 1.1 – Éventail des types de production de champs magnétiques intenses en fonction du maximum de champ et de la durée d'utilisation.

1.2 Approche théorique de la production de champ magnétique Mégagauss

Les calculs effectués dans cette partie contiennent des approximations, ils donnent des valeurs approchées qui mettent en avant les ordres de grandeur mis en jeu dans le générateur ainsi que ses limites physiques.

1.2.1 Force et pression mise en jeu

Pour calculer les forces et pressions mises en jeu, nous allons considérer la force de Lorentz exercée sur une particule de charge q qui se déplace avec une vitesse \vec{v} et soumise à un seul champ magnétique \vec{B} .

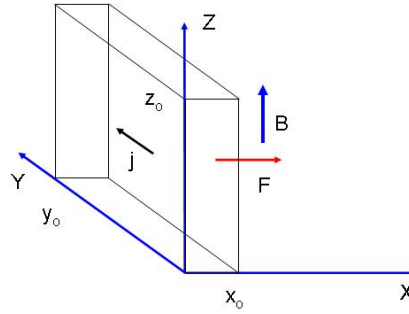


FIGURE 1.2 – Force exercée par le champ magnétique sur une plaque de dimension x_0 , y_0 , z_0 .

$$\vec{F}_{Lorentz} = q\vec{v} \wedge \vec{B}$$

On considère maintenant cette force sur un volume V ,

$$\frac{\vec{F}_{Lorentz}}{V} = \frac{q\vec{v}}{V} \wedge \vec{B} = \vec{j} \wedge \vec{B}, \quad (1.2)$$

où \vec{j} est le vecteur densité de courant. L'expression 1.2, appelée force de Laplace est le résultat macroscopique de la force de Lorentz.

En partant de l'équation 1.4 de Maxwell-Ampère et en considérant un courant de déplacement nul, nous pouvons exprimer le vecteur densité de courant en fonction du champ magnétique, tel que :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \vec{j} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (1.3)$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{B} = \mu_0 \times \vec{j} \quad (1.4)$$

$$\vec{j} = \frac{\vec{\nabla} \wedge \vec{B}}{\mu_0} \quad (1.5)$$

En injectant l'équation 1.5 dans l'équation 1.2, nous pouvons exprimer la force exercée sur le volume V en fonction du champ magnétique \vec{B} .

$$\frac{\vec{F}_{Lorentz}}{V} = \frac{(\vec{\nabla} \wedge \vec{B}) \wedge \vec{B}}{\mu_0} \quad (1.6)$$

Calculons cette force en considérant :

$$\vec{B} = B_z(x)\vec{e}_z \quad \text{et} \quad \vec{j} = j(x)\vec{e}_y \quad (1.7)$$

On obtient,

$$\begin{aligned} \frac{\vec{F}_{Lorentz}}{V} &= \frac{1}{\mu_0} \begin{pmatrix} 0 \\ -\frac{\partial B_z}{\partial x} \\ 0 \end{pmatrix} \wedge \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ B_z \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{\mu_0} \begin{pmatrix} -B_z \times \frac{\partial B_z}{\partial x} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (1.8)$$

La force exercée sur la plaque est unidirectionnel selon l'axe \vec{e}_x .

On considère maintenant une force infinitésimale exercée sur un volume infinitésimale en fixant les valeurs $dy = y_0$ et $dz = z_0$.

$$\frac{d\vec{F}}{dV} = \frac{d\vec{F}}{dxdydz} = \frac{d\vec{F}}{y_0z_0dx} = -\frac{1}{\mu_0}B_z(x) \times \frac{\partial B_z(x)}{\partial x}\vec{e}_x \quad (1.9)$$

On obtient la pression qui est la force exercée sur la surface $S = y_0z_0$ en fonction de x ,

$$d\vec{P}_x = -\frac{1}{\mu_0}B_z(x) \times \frac{\partial B_z(x)}{\partial x}dx \quad (1.10)$$

On intègre pour obtenir la pression totale exercée sur la plaque.

$$\int_0^{x_0} d\vec{P}_x = -\frac{1}{\mu_0} \int_0^{x_0} B_z(x) \frac{\partial B_z(x)}{\partial x} dx \quad (1.11)$$

$$\Rightarrow \vec{P} = \frac{B^2(0) - B^2(x_0)}{2\mu_0} \quad (1.12)$$

La pression magnétique varie avec le carré du champ magnétique. Nous allons calculer la pression réelle exercée sur la bobine.

On considère un anneau de rayon r , d'épaisseur e et de hauteur h représentés sur la figure 1.3 ($r \gg e$). On cherche la pression tangentielle $P_{//}$ exercée par la pression magnétique radiale P_r causée par un champ magnétique B perpendiculaire. On l'exprime comme la force exercée sur la surface orthogonale au plan.

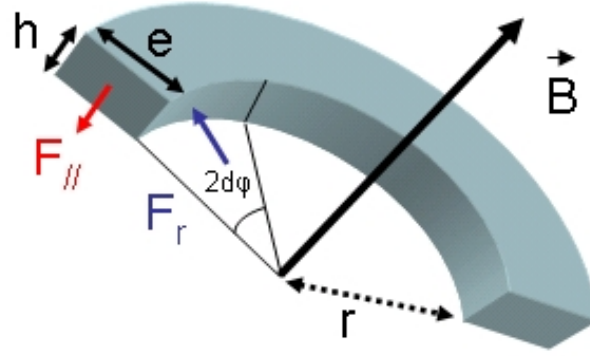


FIGURE 1.3 – Force radiale et force parallèle exercées sur un anneau de rayon r , d'épaisseur e et de hauteur h soumis à un champ perpendiculaire B .

$$P_{//} = \frac{F_{//}}{he} \text{ et } P_r = \frac{F_r}{2d\phi hr} \quad (1.13)$$

En considérant un angle $2d\phi$ infinitésimale, on trouve $F_{//}$ en fonction de la force de Laplace F_r .

$$F_r = F_{//} \tan(2d\phi) \implies F_r = F_{//} 2d\phi \quad (1.14)$$

Puis on injecte l'expression 1.14 dans 1.13,

$$P_{//} = \frac{F_r}{2d\phi he} = \frac{F_r}{2d\phi he} \times \frac{r}{r} = \frac{F_r}{2d\phi hr} \times \frac{r}{e} \quad (1.15)$$

On peut exprimer la pression tangentielle en fonction de la pression radiale.

$$P_{//} = P_r \times \frac{r}{e} = \frac{B^2(0) - B^2(x_0)}{2\mu_0} \times \frac{r}{e} \quad (1.16)$$

Nous pouvons comparer cette pression avec la limite supportable par le conducteur (forces de cohésion).

Pour la résistance des matériaux dits ductiles, on distingue deux gammes de caractérisation à la traction. La première est gouvernée par le module d'Young (E) jusqu'à la limite d'élasticité (R_e) où la contrainte est réversible (régime élastique). La deuxième est un régime inélastique (déformation irréversible, plastique) jusqu'à la limite à la rupture (Ultimate Tensile Strength en anglais). D'après l'expression 1.16, on peut calculer le champ de rupture B_r (c'est à dire lorsque la pression tangentielle est égale à la limite à la rupture) d'une bobine en cuivre ($\delta_{uts} = 0.2 \text{ GPa}$) de rayon $r = 6 \text{ mm}$ et d'épaisseur $e = 3 \text{ mm}$.

$$P_{//} = \delta_{uts} = \frac{B_r^2}{2\mu_0} \times \frac{r}{e} \quad (1.17)$$

$$\implies B_r = \sqrt{2\mu_0 \delta_{uts} \times \frac{e}{r}} = 16 \text{ T} = 0.16 \text{ MG} \quad (1.18)$$

Une bobine en cuivre 12mmx12mmx3mm peut supporter une pression magnétique correspondant à un champ maximum de 16 Tesla environ.

Le tableau 1.1 récapitule le champ magnétique théorique de rupture et le champ magnétique maximum produit avec le générateur Mégagauss du LNCMI pour différentes tailles de bobines.

Taille de la bobine(mm) (diamètre interne)x(hauteur)x(épaisseur)	$B_{rupture}$	B_{max}
20x20x3	12 T	114 T
15x15x3	14 T	154 T
12x12x3	16 T	188 T
10x10x3	17 T	214 T
8x8x3	19 T	253 T

TABLE 1.1 – Valeur du champ magnétique de rupture théorique et du champ magnétique maximum à 55 kV en fonction de la géométrie de la bobine[Portugall O. 1999].

L'obtention de champs Mégagauss ne dépend donc pas de la limite à la rupture des matériaux mais de l'inertie. Il faut donc étudier la dynamique de la bobine.

1.2.2 Dynamique de la bobine

Nous allons calculer l'accélération subie par les morceaux de cuivre de la bobine à partir de l'équation fondamentale de la dynamique. On considère une force radiale F_r exercée sur une section A d'un cylindre de rayon R , d'épaisseur e ($e \ll R$), de masse volumique ρ_m (voir figure 1.4). Le pression magnétique exercée par le champ magnétique externe est considérée comme nulle ($B_{ext} \ll B_{int}$). En considérant un champ B_0 très grand devant le champ de rupture B_{rupt} , on peut considérer la bobine comme une somme d'éléments de masse m indépendants.

$$m \ddot{r}(t) = F_r = P_r(t) \times A = \frac{B_z^2}{2\mu_0} A \quad (1.19)$$

La masse m de l'élément sur lequel la pression s'exerce, en considérant une épaisseur fine ($e \ll R$), s'écrit,

$$m = \rho_m e A \quad (1.20)$$

Le champ magnétique est considéré sinusoïdale d'amplitude B_0 et de période τ_p ,

$$B = B_0 \sin\left(\frac{2\pi t}{\tau_p}\right) \quad (1.21)$$

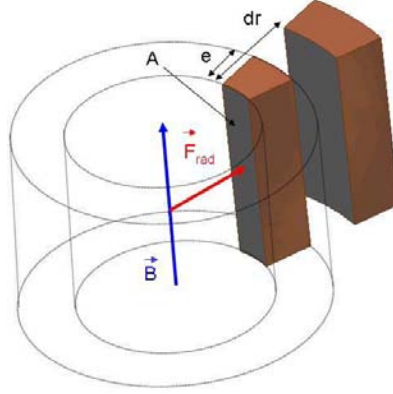


FIGURE 1.4 – Force radiale exercée sur un élément de masse $m = \rho_m e A$, avec e l'épaisseur ($e \ll R$), ρ_m la masse volumique, A l'aire d'application et dr la déformation radiale de la bobine.

On utilise 1.20 et 1.21 dans l'équation 1.19,

$$\begin{aligned} \rho_m e A \ddot{r}(t) &= \frac{B_0^2}{2\mu_0} A \times \sin^2 \left(\frac{2\pi t}{\tau_p} \right) \\ \ddot{r}(t) &= \frac{B_0^2}{2\mu_0 \rho_m e} \times \sin^2 \left(\frac{2\pi t}{\tau_p} \right) \end{aligned} \quad (1.22)$$

En intégrant l'équation 1.22 en fonction du temps, on peut obtenir la vitesse de chaque fragment.

$$\begin{aligned} \dot{r}(t) &= \frac{B_0^2}{2\mu_0 \rho_m e} \int_0^t \sin^2 \left(\frac{2\pi t'}{\tau_p} \right) dt' + v(0) \\ \dot{r}(t) &= \frac{B_0^2}{2\mu_0 \rho_m e} \left(\frac{t}{2} - \frac{\sin \left(\frac{2\pi t}{\tau_p} \right)}{4\pi} \tau_p \right) + v(0) \end{aligned}$$

Pour donner un ordre de grandeur de la vitesse potentielle maximale des morceaux de cuivre, nous considérons une vitesse initiale nulle $v(0) = 0$, une bobine de diamètre 10 mm et d'épaisseur 2.5 mm en cuivre ($\rho_m = 8900 \text{ kg.m}^{-3}$). On calcule la vitesse atteinte par les fragments pendant la première demi-période ($\frac{\tau_p}{2} = 5 \mu\text{s}$) pour un champ maximum de **160 T**.

$$\dot{r}_{max} = \dot{r}\left(\frac{\tau_p}{2}\right) = 1132 \text{ m.s}^{-1} \approx \text{Mach } 3.3$$

Les fragments peuvent atteindre trois fois la vitesse du son.

En intégrant la vitesse en fonction du temps, on peut connaître la position des fragments à

tout instant t .

$$r(t) = \alpha \left(\int_0^t \frac{t'}{2} dt' - \int_0^t \frac{\sin 2\omega t'}{4\omega} dt' \right) + R \quad (1.23)$$

$$r(t) = \alpha \frac{t^2}{4} + \frac{\alpha}{8\omega^2} (\cos(2\omega t) + 1) + R \quad (1.24)$$

Avec R le rayon initial de la bobine, $\omega = \frac{2\pi}{\tau_p}$ la vitesse angulaire et $\alpha = \frac{B_0^2}{2\mu_0\rho_m e}$.

Exprimons la déformation de la bobine $\delta r_{champ\ max}$ à $\frac{\tau_p}{4}$ correspondant au maximum du champ.

$$\begin{aligned} \delta r_{champ\ max} = r\left(\frac{\tau_p}{4}\right) - R &= \frac{\alpha}{4} \frac{\tau_p^2}{16} + \frac{2\alpha}{8(4\pi^2)} \tau_p^2 \\ &= \alpha \left(\frac{\tau_p}{4}\right)^2 \left(\frac{1}{4} + \frac{1}{\pi^2}\right) \end{aligned} \quad (1.25)$$

On comprend ici que pour limiter la déformation δr de la bobine et donc augmenter le champ maximum, la masse volumique ρ_m (compris dans le paramètre α) et le temps de montée sont les paramètres importants. L'utilisation du cuivre est donc liée à sa faible résistivité, à sa grande densité ($d=8,9$) et à sa facilité d'usinage (découpe, cintrage). Le remplacement par un matériau plus dense (or, $d=19,3$) permettrait d'optimiser la production de champ magnétique mais pour un coût incomparablement plus élevé.

Nous allons maintenant définir une déformation de la bobine de 10%, acceptable pour ne pas perdre trop de champ magnétique (augmentation de la surface à flux constant).

Calculons le temps de montée maximum $\tau_m = \frac{\tau_p}{4}$ pour atteindre un champ de 160 T avec une déformation maximum de la bobine, $\delta r_{champ\ max} = 1\ mm$, de diamètre 10 mm et d'épaisseur 2.5 mm en cuivre .

$$\tau_m = \frac{\tau_p}{4} = \sqrt{\frac{\delta r}{\alpha \left(\frac{1}{4} + \frac{1}{\pi^2}\right)}} = 2.49\ \mu s \quad (1.26)$$

avec la masse volumique du cuivre $\rho_{Cu} = 8900\ kg.m^{-3}$.

Pour atteindre des champs Mégagauss supérieurs à 160 Tesla, le temps de montée du courant doit être inférieure à $2.5\ \mu s$ environ. C'est une limite intrinsèque à la technique de la bobine monospire. Il apparaît donc nécessaire de dimensionner le circuit électrique et l'appareillage de déclenchement en fonction des résultats obtenus.

1.2.3 Circuit RLC

Le générateur peut être considéré comme un circuit RLC schématisé sur la figure 1.5.

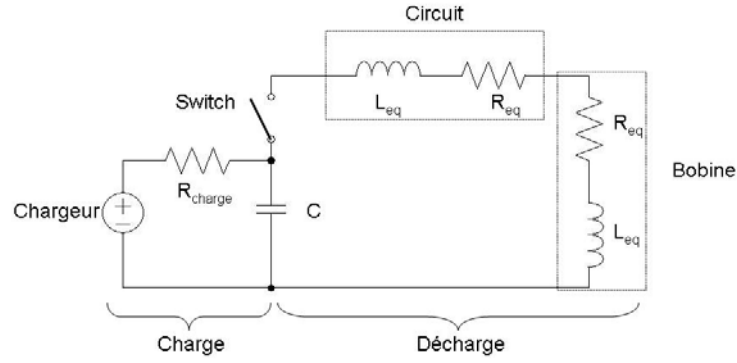


FIGURE 1.5 – Schéma du circuit électrique équivalent du générateur Mégagauss.

En utilisant la loi des mailles sur la partie décharge, on peut écrire,

$$U_c = -L_{total} \times \dot{I} - R_{total} \times I \quad \text{avec} \quad I = C \dot{U}_c \quad (1.27)$$

où, L est l'inductance, C la capacité, U_c la tension aux bornes du condensateur et I le courant.

Le circuit de décharge est décrit par l'équation différentielle,

$$LC \ddot{U}_c + RC \dot{U}_c + U_c = 0 \quad (1.28)$$

Cette équation admet comme solution,

$$U(t) = U_0 e^{-\frac{R}{2L}t} \left(\cos \left(\sqrt{\frac{1}{LC} - \frac{R^2}{4L^2}} t \right) \right) \quad (1.29)$$

Nous négligerons la résistance (quelques dizaines de $m\Omega$) par la suite pour exprimer les ordres de grandeur de L et C en fonction de la période $\tau = 4\tau_m$ (voir équation 1.26) maximale pour atteindre des Champs Mégagauss. Il existe donc une limite sur l'inductance et la capacité.

$$\omega = \sqrt{\frac{1}{LC}} = \frac{2\pi}{\tau} \Rightarrow LC = \frac{\tau^2}{4\pi^2} \quad (1.30)$$

En utilisant les valeurs précédentes, on obtient la condition.

$$LC < 2.5 \times 10^{-12} \text{s}^2 \quad (1.31)$$

En tenant compte des limites techniques, cette valeur montre immédiatement la nécessité de minimiser simultanément la capacité et l'inductance. Pour l'inductance, une stricte limite inférieure est donnée par l'inductance de la bobine (10 nH pour une bobine 10x10x3). Il faut également tenir compte de l'inductance du générateur ($\simeq 10$ nH).

$$L_{totale} = L_{bobine} + L_{générateur} \geq 20 \text{ nH} \quad (1.32)$$

On peut en déduire la valeur de la capacité des condensateurs

$$C \leq \frac{2.5 \times 10^{-12}}{20 \times 10^{-9}} = 125 \mu\text{F} \quad (1.33)$$

Nous pouvons maintenant estimer le courant et la tension nécessaire. D'après l'équation 1.27 et 1.29, en négligeant la résistance, on peut exprimer la tension en fonction de l'intensité.

$$U = \sqrt{\frac{L}{C}} I \quad (1.34)$$

Considérons une bobine de rayon interne R , de diamètre externe $R + e$ et de hauteur h . On peut calculer le rapport entre le champ magnétique et l'intensité parcourant la bobine en cuivre [Montgomery 1963] en considérant une densité de courant j homogène dans la bobine.

$$\frac{B}{I} = \frac{\mu_0}{e} \ln \left(\frac{\frac{R+e}{R} + \sqrt{\left(\frac{R+e}{R}\right)^2 + \left(\frac{h}{2R}\right)^2}}{1 + \sqrt{1 + \left(\frac{h}{2R}\right)^2}} \right) \quad (1.35)$$

Estimons le courant nécessaire pour produire 160 T dans une bobine de 10 mm de diamètre, d'épaisseur 2.5 mm et de hauteur 10 mm.

$$I = \frac{B}{\frac{\mu_0}{e} \ln \left(\frac{\frac{R+e}{R} + \sqrt{\left(\frac{R+e}{R}\right)^2 + \left(\frac{h}{2R}\right)^2}}{1 + \sqrt{1 + \left(\frac{h}{2R}\right)^2}} \right)} \approx 2 \text{ MA} \quad (1.36)$$

La tension minimale nécessaire d'après l'équation 1.34 et 1.36 est d'environ 30 kV.

Cette partie théorique démontre la nécessité d'utiliser des hautes tensions et des basses inductances. Ces deux contraintes sont en concurrence l'une par rapport à l'autre. En effet, plus la tension augmente, plus l'isolation doit être épaisse entre les conducteurs et donc l'inductance sera grande.

Nous allons maintenant décrire l'installation Mégagauss et ses principaux éléments caractéristiques.

1.3 Descriptif de l'installation

1.3.1 Structure

Une coupe longitudinale le long de l'installation ainsi qu'une coupe transversale au niveau de la bobine sont représentées sur la figure 1.6 (à gauche et à droite respectivement).

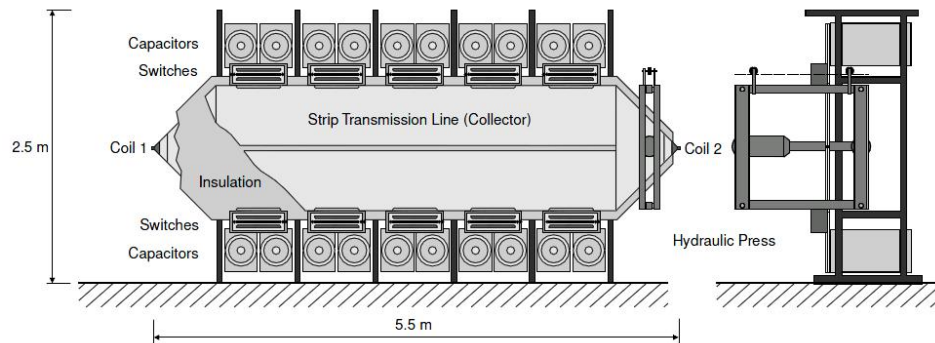


FIGURE 1.6 – Schéma (gauche) d'ensemble à l'échelle du banc de condensateur et du circuit électrique principal du générateur Mégagauss. La partie droite montre la partie terminale avec la presse hydraulique [Portugall O. 1999].

On distingue trois différentes parties :

- La partie centrale où sont illustrées les amenées de courant. Ces conducteurs sont composés de plaques d'aluminium de 3 m de long, de 1 m (2x50 cm) de large et de 2 cm d'épaisseur permettant de collecter le courant. Les parties triangulaires permettent la transmission du courant vers la bobine. L'isolation entre les deux plaques affichant une différence de potentiel de 60 kV (localement >100 kV) est la partie critique de l'installation. Elle est constituée de six feuilles de polyéthylène téréphthalate et de deux feuilles de polyimide de 300 microns et 100 microns d'épaisseur respectivement. La faible épaisseur permet de minimiser l'inductance (2.4 nH.m^{-1}). Cette partie est suspendue par des lanières qui permettent d'absorber les contraintes mécaniques.
- La partie inférieure et supérieure constituée de 20 condensateurs et de 10 éclateurs à gaz-plasma. Les principales caractéristiques de ces composants sont résumées dans le tableau 1.2. Pour permettre le passage du courant pendant un temps très court (voir partie 1.2), on utilise l'effet d'avalanche (loi de Paschen) initié par l'ionisation d'un gaz fortement diélectrique qui crée une décharge plasma. On utilise un mélange Ar/O₂ pour des tensions de charge jusqu'à 30 kV et un mélange de SF₆/Ar pour des tensions de charge de 30 à 60 kV. De part leur limitation de courant (750 kA), les éclateurs à gaz-plasma doivent être opérés en parallèle. Cette disposition a deux avantages, une baisse de l'inductance totale du circuit (2 nH) et un gain en sécurité grâce à l'arrangement modulaire.

Valeurs Max	Condensateur			Eclateur	
	Courant	Capacité	Inductance	Courant	Inductance
Module (60 kV)	2×250 kA	2×6 μ F	$\frac{40}{2}$ nH	750 kA	20 nH
Total (60 kV)	5 MA	120 μ F	2 nH	7.5 MA	2 nH

TABLE 1.2 – Caractéristiques des condensateurs 31284 (*Maxwell*) et des éclateurs à gaz 40200 (*Maxwell*) pour chaque module et pour la totalité des 10 modules du générateur Mégagauss.

- La partie terminale où a lieu l'expérience. Les bobines utilisées en cuivre standard sont illustrées de gauche à droite sur la figure 1.7 avant, après un tir à 37 T et 188 T respectivement. Elles se composent de deux parties, la monospire où le champ magnétique est créé et une partie triangulaire qui injecte le courant. Elles sont découpées à partir d'une plaque de cuivre puis cintrées autour de l'axe de la spire. Ce mode de fabrication évite les soudures, permet une fabrication en série et réduit les coûts. La dénomination de chaque bobine est composée de trois valeurs (diamètre interne x hauteur et épaisseur) données en mm. Les spires offrant le meilleur compromis entre le maximum et l'homogénéité du champ magnétique ont un rapport 1 : 1 entre le diamètre interne et la hauteur et une épaisseur de 3 mm. Le diamètre de la bobine varie de 5 mm à 20 mm dépendant de la valeur du champ magnétique souhaitée et des contraintes expérimentales (basse température). L'isolation dans la spire est assurée par une ou deux couches de polyimide. Une couche de polyéthylène téréphtalate est ajoutée pour l'isolation des parties triangulaires soumise à la presse hydraulique. Ce système de blocage illustré sur la partie droite de la figure 1.6 possède deux fonctions importantes. La première est de contenir la contrainte mécanique exercée sur la bobine. La deuxième est d'assurer un bon contact électrique entre la bobine et l'amenée de courant via une pièce en laiton pour limiter les arcs électriques. En outre, ce montage permet un remplacement rapide et facile de la bobine. En condition de tir, la pression maximale exercée est de 80 bars environ.

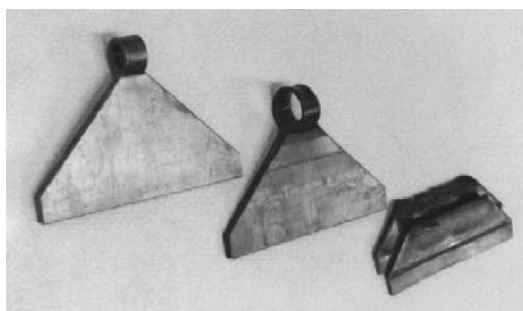


FIGURE 1.7 – Bobine monospire de 12 mm x 12 mm x 3 mm avant le tir (gauche), après une décharge de 10 kV et 6 kJ à 37 T (milieu) et après une décharge de 55 kV et 189 kJ à 188 T (droite). La photo du milieu montre le cas d'une déformation sans rupture, et celle de droite la destruction totale de la partie circulaire avec des traces de fusion et la déformation de la partie triangulaire non contrainte par la presse hydraulique[Portugall O. 1999].

1.3.2 Production de champs Mégagauss

Les différents champs disponibles avec le générateur, résumés dans le tableau 1.3, dépendent du diamètre de la bobine utilisée.

Bobine (mm)	Inductance bobine (nH)	Champ max (T)	Temps de montée μs	$\frac{dB}{dt_{max}}$ $T.s^{-1}$
5	3.3	300	1.3	40×10^7
7	4.7	261	1.55	30×10^7
8	5.3	253	1.65	28×10^7
10	6.7	214	2	18×10^7
12	8	188	2.3	15×10^7
15	10	154	2.5	10×10^7
20	13.3	114	2.7	8×10^7

TABLE 1.3 – Caractéristiques des champs magnétiques produits en fonction de la taille de la bobine à 55 kV

La taille de la bobine va dépendre des caractéristiques de l'expérience et du champ magnétique requis. La nécessité de températures basses (Hélium) impliquera une taille des bobines supérieure ou égales à 12 mm.

La figure 1.8 montre le profil temporel des champs maximum (à 55 kV) en fonction de la taille de la bobine et les champs magnétiques en fonction de la tension de charge.

Le circuit se comportant comme un circuit RLC oscillant, la forme du champ se rapproche

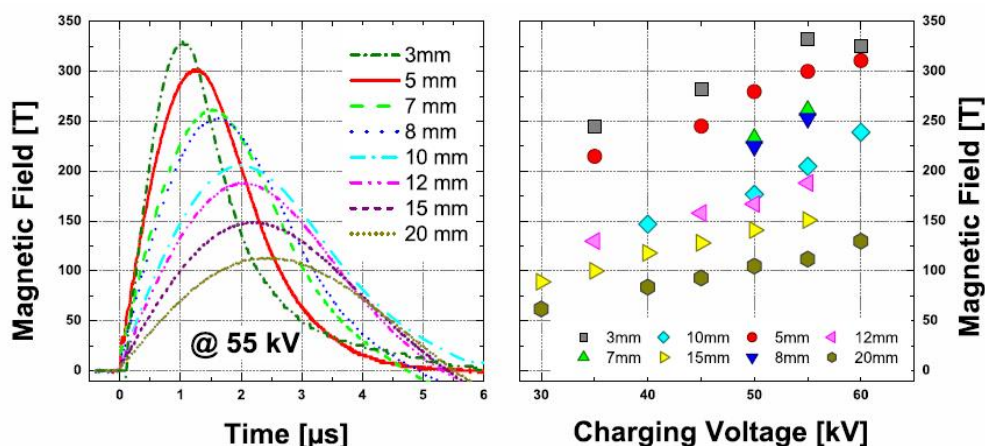


FIGURE 1.8 – Champ magnétique obtenu en fonction de la taille de la bobine à 55 kV. Champ magnétique maximum en fonction de la taille de la bobine et de la tension de charge [Hansel 2006].

d'une sinusoïde pseudo périodique amortie. La pseudo-fréquence du champ magnétique est comprise entre 90 kHz et 192 kHz.

Le record de champ magnétique de 331 T a été obtenu avec l'installation Mégagauss à Berlin dans une bobine de 3 mm de diamètre [Hansel 2006] sans toutefois permettre l'étude sur échantillon.

Il est également possible d'effectuer des tirs reproductibles, sans changer la bobine, à bas champ ($B < 60$ T). On utilise pour cela un renfort en acier qui permet de contenir la déformation de la bobine. On obtient alors un champ alternatif avec une forme de sinusoïde amortie, permettant de mesurer trois périodes sur $40 \mu s$ [Hansel 2006].

1.4 Contraintes et Perturbations liées aux champs Mégagauss

Comme démontrée dans les parties précédentes, la caractéristique principale des champs magnétiques Mégagauss est la vitesse de décharge des condensateurs. La dérivée temporelle du champ magnétique est de l'ordre de $10^8 \text{ Tesla.s}^{-1}$. Elle est illustrée (en bleu, en rouge et en noir) sur la figure 1.9 (échelle de droite) pour différentes valeurs de champ magnétique (échelle de droite) correspondant à différents diamètres de bobines (8, 10, 12 mm) et une tension de charge de 40 kV.

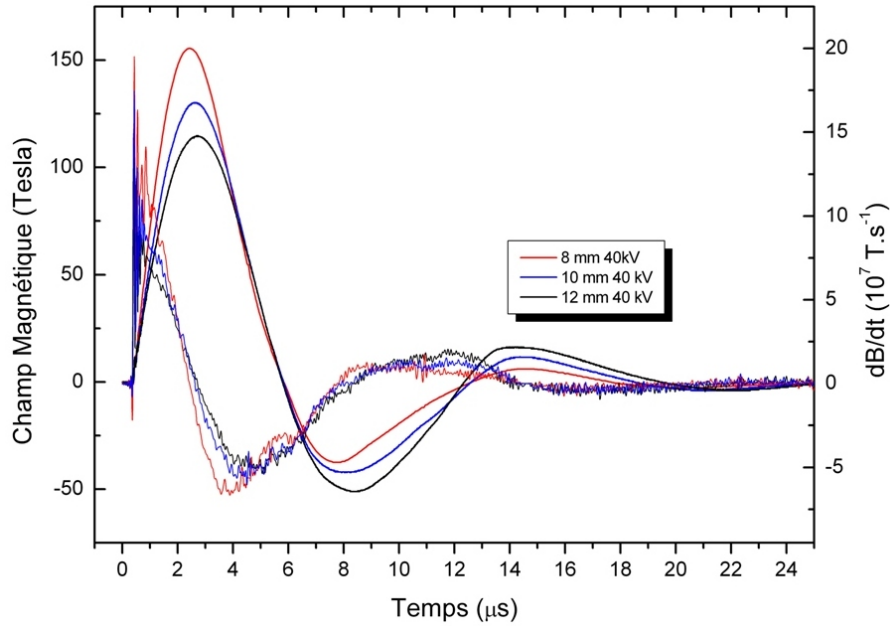


FIGURE 1.9 – Champ magnétique mesuré (échelle de gauche) en fonction du temps pour différentes tailles de bobines (8 mm en rouge, 10 mm en bleu et 12 mm en noir) et une tension de charge de 40 kV. Valeurs correspondantes du $\frac{dB}{dt}$ calculée numériquement (échelle de droite).

Cette spécificité a des conséquences importantes :

- sur l’acquisition des données expérimentales liées à la vitesse de détection et aux perturbations électromagnétiques créées par le déclenchement,
- sur les propriétés physiques de l’échantillon liées aux effets de tensions et de courants induits,
- sur l’environnement expérimental lié à la destruction de la bobine.

Chaque conséquence fera l’objet d’une partie détaillée. L’analyse d’un résultat caractéristique de magnéto-transmission sous lumière polarisée obtenu sur le graphite démontrera la reproductibilité des mesures.

1.4.1 Acquisition

Détection en temps réel

La chaîne d’acquisition pour le champ magnétique et le signal optique doit être capable de mesurer des signaux ultra-rapides. L’échantillonnage nécessaire pour résoudre 1 T est de 100 MHz (soit 10 ns par point). Ceci permet de mesurer des fréquences jusqu’à 50 MHz dans un signal analogique (théorème de Nyquist-Shannon) [Shannon 1998]. Ceci définit

la bande passante minimale du pré-amplificateur et de l'entrée analogique du numériseur. Même si des mesures peuvent être effectuées à des fréquences de même ordre de grandeur, la difficulté réside ici sur le fait que le signal doit être mesuré en temps réel. Le système de mesure du champ magnétique est échantillonné à 200 MHz (soit 5 ns par point). Pour permettre une bonne résolution, le signal optique doit être échantillonné à 1 GHz (soit 1 ns par point).

Synchronisation

Pour effectuer la mesure entre les données optique et la mesure du champ magnétique, il est nécessaire de :

- faire correspondre le passage du faisceau dans le chopper avec le champ magnétique. Le chopper permet d'avoir un signal carrée de l'ordre de la centaine de microsecondes qu'il faut synchroniser avec un tir de l'ordre de la dizaine de microsecondes. Il est alors facile de faire coïncider le déclenchement avec le signal du passage du faisceau via une ligne à retard (1 ns à 1 s).
- décaler temporellement les deux signaux échantillonnés à 1 GHz (interpolation de la mesure du champ magnétique) l'un par rapport à l'autre. Ceci permet de compenser la gigue et surtout permet de compenser le décalage apporté par la transmission du signal vers le système d'acquisition. Toute modification du système de détection modifiera (détecteur, longueur de câbles...) ce décalage.

Perturbations liées au déclenchement

Le déclenchement crée un fort champ électrique transitoire qui rayonne dans tout l'environnement expérimental pendant les premières microsecondes. Un enregistrement de la tension mesurée aux bornes d'un câble BNC 50 Ω placé à 3 m de distance de la bobine est illustré sur la figure 1.10a. Cette onde radiofréquence (~ 100 MHz), illustrée sur la figure 1.10b, perturbe les systèmes d'acquisition par l'intermédiaire des tensions induites dans les conducteurs. Ce signal peut être filtré (électroniquement et numériquement) pour la mesure du champ magnétique ($f_{\text{champ}} \sim 100$ kHz). En revanche, les transitions optiques peuvent être complètement occultées au début du champ car leur pseudo-fréquence est proche. Il est donc nécessaire d'utiliser un blindage électromagnétique (cage de Faraday) pour protéger les systèmes d'acquisition.

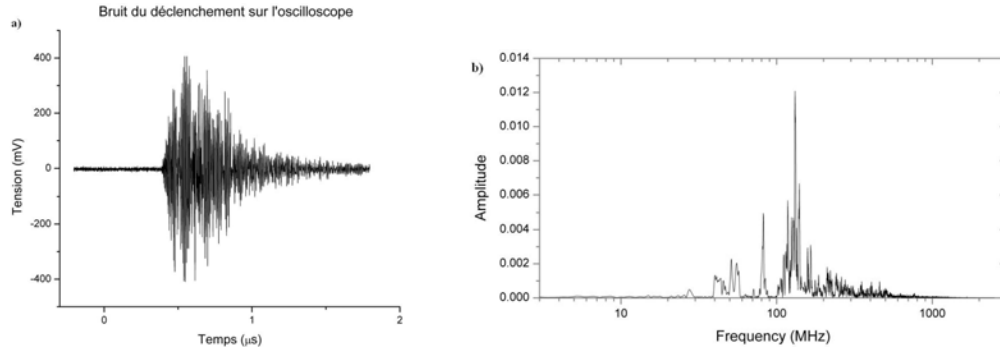


FIGURE 1.10 – a) Bruit du déclencheur enregistré sur un oscilloscope avec un câble BNC de 1 mètre à l'extérieur de la cage de Faraday principal et une porte entrouverte. b) Analyse fréquentiel du bruit créé par le déclenchement.

1.4.2 Propriétés physiques de l'échantillon

Les effets induits dus au champ magnétique transitoire imposent la limitation de tout élément conducteur exposé au champ magnétique (cryostat, porte-échantillon, électrodes, soudures...) jusqu'à une distance d'environ 5-10 cm de la bobine. Pour limiter les conséquences des effets induits sur les mesures, il est nécessaire de porter une attention particulière aux dimensions de l'échantillon. Les dimensions des échantillons doivent être largement inférieure à la profondeur de pénétration δ . Cette dimension spatiale correspond à l'atténuation ($1/e$) d'une onde électromagnétique de fréquence f dans un matériau en fonction de sa conductivité et de sa perméabilité magnétique. En première approximation on considère le champ magnétique comme étant sinusoïdale de fréquence 100 kHz.

La profondeur de pénétration δ s'écrit :

$$\delta = \sqrt{\frac{1}{\pi \sigma \mu \times 10^5}} \quad (1.37)$$

La figure 1.11 illustre la profondeur de pénétration du champ magnétique pour des champs Mégagauss en fonction de la conductivité σ des matériaux faiblement paramagnétique ou diamagnétique ($\mu = \mu_0$). La gamme de conductivité (25K à 300K) du graphite est indiquée selon l'axe $\sigma_c^{graphite}$ et dans le plan $\sigma_a^{graphite}$. La conductivité du cuivre (à 20°) et la conductivité théorique du graphène sont indiquées par une flèche. En fonction de leur importance les effets des courants induits peuvent être négligeables, engendrés des hystèreses sur les mesures (échauffement, déplacement des porteurs de charges...) ou peuvent mo-

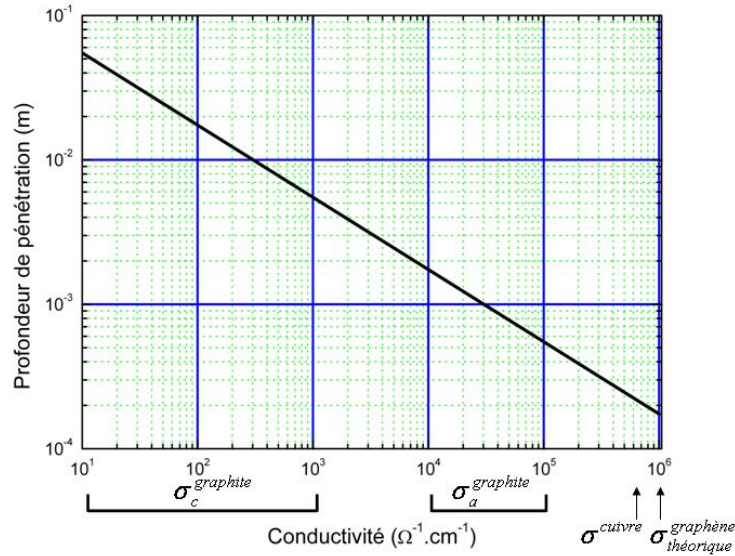


FIGURE 1.11 – Profondeur de pénétration du champ magnétique Mégagauss ($f \approx 100$ kHz) en fonction de la conductivité électrique [Hansel 2006]. La gamme de conductivité (25K à 300K) du graphite est indiquée selon l'axe c $\sigma_c^{\text{graphite}}$ et dans le plan $\sigma_a^{\text{graphite}}$. La conductivité du cuivre (à 20°) et la conductivité théorique du graphène sont indiquées par une flèche.

difier irrémédiablement l'échantillon (cassure, brûlure...) [Hansel 2006]. Dans cette thèse, plusieurs paramètres comme la taille des cristaux (~ 10 microns) et l'épaisseur ($e \ll 1$ micron) des échantillons et, les mesures à température ambiante (baisse de la conductivité) ont limité tous ces effets. L'absence d'hystérèse sera démontré dans la section 1.4.4. Néanmoins, un morcellement montré sur la figure 2.6 du graphite exfolié en cristaux de taille plus petite a été observé après le premier tir. Aucun effet sur la reproductibilité (>10 tirs avec le même échantillon) des mesures n'a été observé. Ceci indique que les dimensions des modifications (morcellement) apportées à l'échantillon restent largement supérieures à la longueur magnétique.

1.4.3 Phénomènes mécaniques

Projection des fragments (plan médian)

La partie 1.2.2 a démontré que les morceaux de cuivre sont éjectés à des vitesses dépassant celle du son. La figure 1.12 montre les impacts, à proximité immédiate de la bobine, causés par la pression magnétique exercée sur la bobine.

Ces impacts se répartissent majoritairement dans le plan médian de la bobine matérialisant la direction de la force de Laplace. Aucun équipement ne peut se trouver dans ce plan

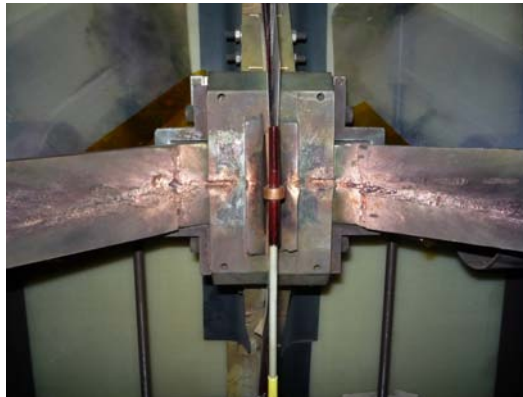


FIGURE 1.12 – Barres de protection des vérins hydrauliques. Les dégâts causés par les morceaux de cuivre matérialisent le plan médian de la bobine (c'est à dire. la direction de la force de Laplace).

médian. L'intensité des dégâts varie en fonction de la tension de charge (énergie) et en fonction de la taille de la bobine (masse des projectiles). La photographie 1.13 montre la cage de protection blindée en acier de 4 mm d'épaisseur sur laquelle sont fixés des morceaux de bois qui permettent d'absorber les gros morceaux de cuivre éjectés.

Onde de choc

A cause de la destruction de la bobine, il en résulte une onde de choc. La compression arrive à la fin de l'impulsion, environ $10 \mu s$ après le début du champ lorsque la bobine se désintègre, elle a donc une influence faible sur les mesures mais perturbe l'environnement. La cage blindée de protection étant fermée latéralement, l'onde de choc est guidée de part et d'autre (haut et bas) de la bobine. Il faut donc prêter une attention toute particulière sur les équipements optiques et cryogéniques situés à une distance inférieure à 1 mètre et laisser une ouverture suffisamment large (20 cm de diamètre) en haut et en bas pour permettre la dissipation de cette énergie.



FIGURE 1.13 – Cage de protection en plaques d’acier de 4 mm d’épaisseur.

1.4.4 Reproductibilité et Hystérèse

Pour s’assurer de la reproductibilité des mesures et de l’absence d’hystérèse, il est nécessaire :

- de s’assurer de la superposition des pics d’absorption entre la montée et la descente du champ magnétique (hystérèse).
- de comparer plusieurs tirs en changeant la dérivée du champ magnétique (taille de la bobine, tension de charge) pour vérifier l’absence d’impact de la vitesse sur le système de détection.

Le générateur Mégagauss permet de mesurer le signal de transmission sur trois à quatre (une à deux) demi-périodes pour des tirs inférieurs (supérieurs) à 100 T environ. Cet avantage permet d’étudier les effets d’hystérèse ainsi que les effets de la polarisation (changement de signe du champ magnétique).

La figure 1.14 montre un résultat caractéristique de magnéto-transmission polarisée (239 meV) que nous avons mesuré sur un échantillon de graphite cristallin exfolié.

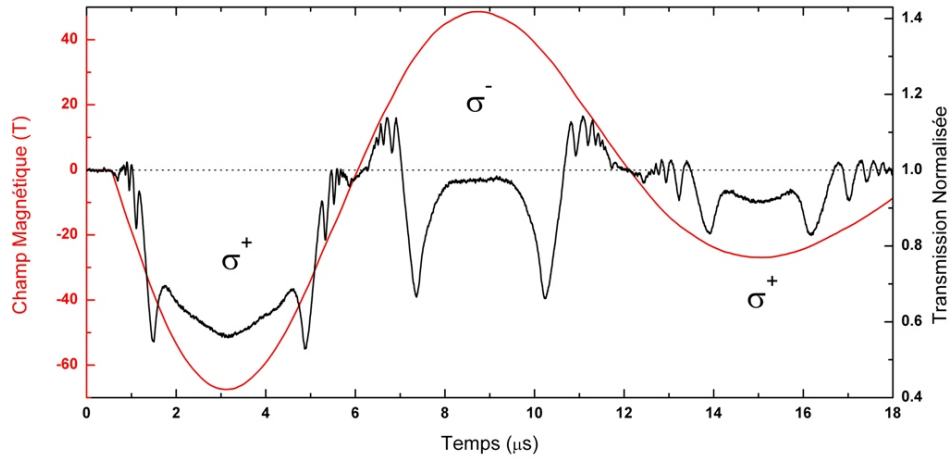


FIGURE 1.14 – Transmission polarisée (échelle de droite) sur un échantillon de graphite cristallin exfolié à 239 meV. La courbe rouge indique le champ magnétique. La bobine utilisée est de 15 mm de diamètre pour une tension de charge de 30 kV.

On observe sur cette figure une très bonne symétrie (champ magnétique de même signe) entre les pics d'absorption lors de la montée et de la descente du champ magnétique. De plus, l'effet de la polarisation (σ^+ et σ^-) est clairement visible. Le champ magnétique alternatif permet de mesurer directement pendant le même tir la différence entre les deux polarisations. La figure 1.15 montre le résultat de magnéto-transmission en fonction du champ magnétique. Tous les pics d'absorptions observés au dessus de 10-20 T sont superposables et l'erreur relative en champ magnétique reste inférieure à 2%. Cependant, on note une hystérèse pour des champs magnétiques inférieurs à 10 Tesla liée à la grande valeur de la dérivée.

L'utilisation de plusieurs bobines de taille différentes (modification de la dérivée du champ magnétique) a permis de mettre en évidence l'absence de limitation de la vitesse de détection sur l'amplitude et la valeur en champ magnétique des différents pics d'absorption (voir figure 4.5). En outre, l'utilisation de tensions de charge plus faibles et de bobine plus grande permet de résoudre les résonances à plus bas champ.

Toutes les transitions observées au dessus de 10 T environ dans les échantillons mesurés de graphite et de graphène sont reproductibles et ne dépendent pas de la valeur de la dérivée du champ magnétique.

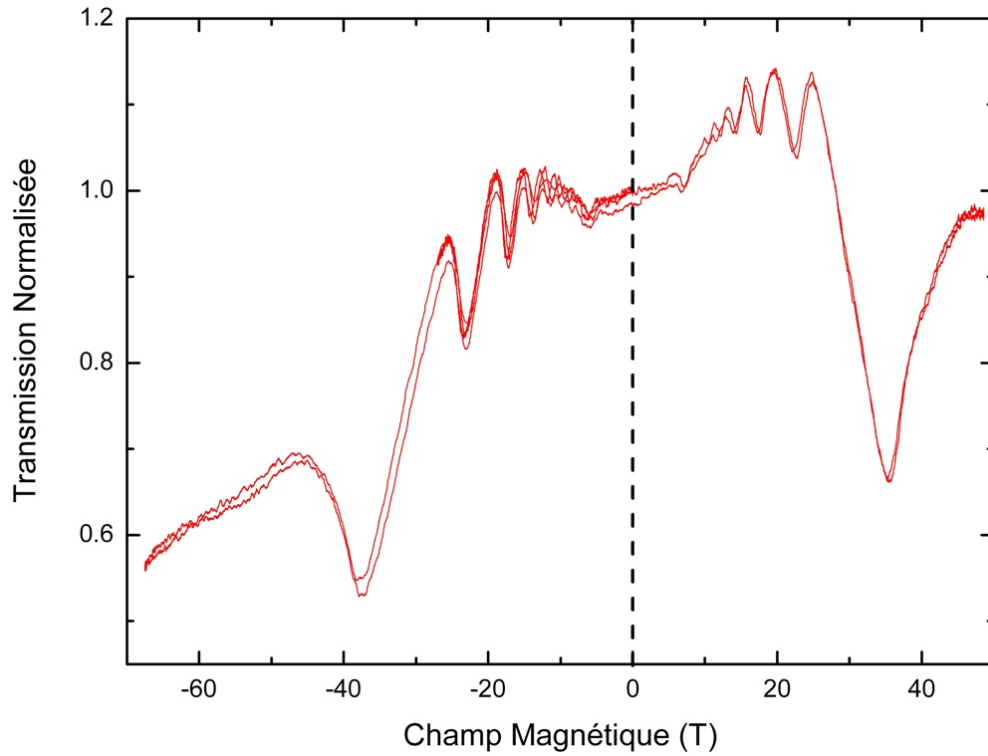


FIGURE 1.15 – Signal de magnéto-transmission polarisée en fonction du champ magnétique de la figure 1.14. Les pics d'absorption au-dessus de 10 Tesla environ sont reproductibles.

1.5 Techniques de base pour la mesure sous champs Mégagauss

1.5.1 Mesure du champ magnétique

La rapidité de l'impulsion demande une attention toute particulière sur la sonde de mesure qui sera le principal facteur de précision des expériences. On utilise deux méthodes pour caractériser la valeur du champ à tout instant t .

1.5.1.1 La bobine de détection ("pick-up coil") :

Cette méthode est la plus utilisée pour les mesures de champs magnétiques transitoires. Elle repose sur la loi de Faraday et consiste à mesurer la tension induite aux bornes d'une bobine de détection.

$$U_{pick-up} = A_{eff} \times \frac{dB}{dt} \quad (1.38)$$

où A_{eff} est la projection de l'aire formée par les fils, perpendiculairement au champ magnétique. Elle dépend également du nombre de spires de la bobine (généralement 1 tour pour les champs Mégagauss).

Le signal est donc proportionnel à la surface effective et à la dérivée temporelle du champ magnétique B . Le temps de montée dépend de la bobine monospire comme indiquées sur le tableau 1.3. Pour les mesures allant jusqu'à 200 T et sans risquer de claquage de l'isolant, une bobine de détection d'un seul tour avec un diamètre de 2.5 mm maximum est imposée. L'utilisation d'une résine époxy enrobant la bobine est nécessaire pour éviter tout changement d'aire de la bobine (dû à la pression magnétique), pour diminuer le bruit de la mesure du champ magnétique et pour limiter les contraintes mécaniques sur l'isolant. On utilise des fils très fins de $d=50\text{ }\mu\text{m}$ et $d=40\text{ }\mu\text{m}$ pour diminuer l'incertitude sur l'aire causée par la répartition inhomogène du courant ($d < \delta$ voir equation 1.37).

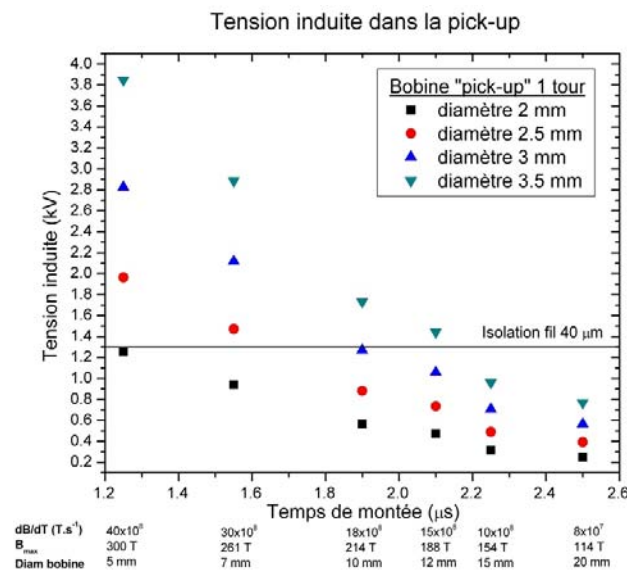


FIGURE 1.16 – Valeurs des tensions induites dans la bobine de détection ("pick-up coil") en fonction de son diamètre (pour 1 spire) et du temps de montée du champ magnétique. Les valeurs du $\frac{dB}{dt}$, du champ magnétique maximal et de la taille de la bobine monospire correspondant au temps de montée sont indiquées en bas. La ligne pleine noire matérialise la tension de claquage de l'isolant du fil de 40 μm grad 2.

La surface effective est calibrée en comparant la réponse à un champ magnétique sinusoïdale à 100 kHz avec celle d'une bobine de référence au moyen d'un amplificateur à détection synchrone.

Comme décrit précédemment, l'objectif est de mesurer un champ magnétique avec une précision de 1 T minimum (100 MHz) et également de minimiser les perturbations induites par le système de déclenchement. Le système est ici échantillonné à 200 MHz. A cause des fortes valeurs des tensions induites et des perturbations électromagnétiques, il est nécessaire d'effectuer un traitement électronique du signal de la tension de la bobine de

détection avant l'enregistrement.

La figure 1.17 montre le dispositif permettant l'intégration, le filtrage du signal délivré par la bobine de détection et sa numérisation.

Il est composé :

- d'un intégrateur de type RC ($R=22\text{ k}\Omega$ et $C=44\text{ nF}$). Ce régime est possible si le temps d'intégration est largement inférieur à la constante de temps ($\tau = RC = 10^{-3}$). La tension U aux bornes du condensateur s'écrit :

$$U_{int} = \frac{1}{RC} \int_0^t \frac{dB}{dt} dt \quad (1.39)$$

- d'un filtre LC RFI/EMI (interférence radio-fréquence/électromagnétique). La valeur de la capacité C_1 est de 1.27 nF et de l'inductance L est 115 nH . La fréquence de coupure est donc de 13 MHz . C'est un filtre passe-bas dont le but est d'écarter les perturbations électromagnétiques récupérées sur les câbles et les structures métalliques (antennes) créées par le déclenchement.
- d'un numériseur. Il convertit (ADC) le signal analogique sur 10 bits à 200 MHz pendant $40\text{ }\mu\text{s}$ puis stocke la mesure dans deux mémoires FIFO (First In/First Out) permettant la transmission, plus lente, en signal optique. Une vérification est effectuée en comparant les données des deux mémoires, assurant le bon déroulement de l'acquisition. Enfin, le signal optique reconverti est enregistré sur l'ordinateur. A cause de la valeur finie de la constante de temps τ et des valeurs R_D et C_D du convertisseur [Kirste 2004], un terme de correction peut être calculer numériquement :

$$\int_0^t U(t') dt' = R(C + C_D)U_{int}(t) + \left(1 + \frac{R}{R_D}\right) \int_0^t U_{int}(t') dt' \quad (1.40)$$

où U est la tension crée dans la bobine de détection.

L'avantage de ce système est de pouvoir négliger la variation de la résistance du câble comparé à la résistance de l'intégrateur ($R_p \ll R$) et aussi de la capacité parasite du convertisseur ($C_D \ll C$).

Tout le système électronique (convertisseur) doit être alimenté par batterie et dans un environnement blindé électromagnétiquement pour éviter tout endommagement des composants causé par l'impulsion électromagnétique créée par le déclenchement.

La précision de mesure du champ magnétique par cette méthode est meilleure que 2% et dépend essentiellement de la précision sur la surface de la bobine de détection. Il est également indispensable d'adapter la surface de la bobine pick-up pour obtenir une gamme de tension la plus proche de la gamme du convertisseur (-1 à $+1\text{ V}$).

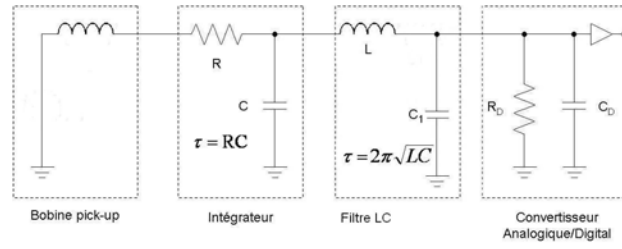


FIGURE 1.17 – Circuit équivalent de mesure du champ magnétique.

1.5.1.2 La rotation Faraday :

La deuxième méthode pour mesurer le champ magnétique repose sur une propriété optique des matériaux diélectriques, l'effet faraday, illustré sur la figure 1.18. Cet effet entraîne une rotation de la polarisation linéaire incidente en fonction de la constante de Verdet du matériau pour une longueur d'onde donnée, v en $[\text{°} \cdot \text{T}^{-1} \cdot \text{mm}^{-1}]$, de la longueur d , parcourue par la lumière et du champ magnétique B . En intercalant un polariseur et un analyseur, on peut calculer l'angle de rotation (equation 1.41) en mesurant l'intensité de la transmission (equation 1.42) en fonction du champ magnétique (Loi de Malus).

$$\theta = vBd \quad (1.41)$$

$$I = \cos^2(\theta) \quad (1.42)$$

Le cristal de CdS possède une constante de Verdet égale à $7.2^\circ \cdot \text{T}^{-1} \cdot \text{mm}^{-1}$ pour une lon-

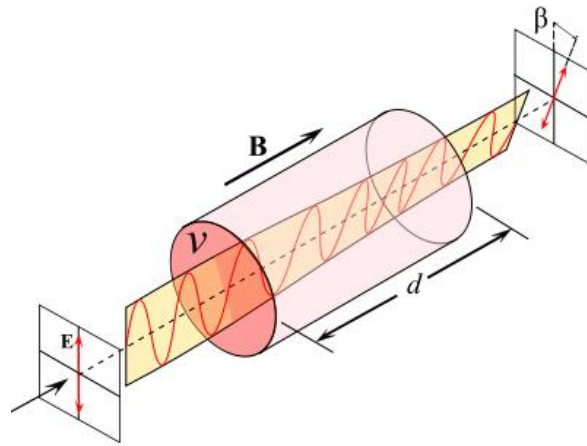


FIGURE 1.18 – Rotation Faraday d'une lumière incidente linéairement polarisée dans un diélectrique créée par un champ magnétique.

gueur d'onde de 632.8 nm jusqu'à 500 T [Druzhinin 1995] selon l'axe c. La figure 1.19 présente le schéma du dispositif de mesure de la constante de Verdet du cristal de CdS sous

champ Mégagauss. La photographie 1.20 montre la première sonde Faraday utilisée. Dans cette configuration, on utilise un cristal de CdS avec un dépôt d'or sur une des faces perpendiculaire à l'axe c . En utilisant deux fibres optiques parallèles et un polariseur (qui joue également le rôle d'analyseur), on effectue un aller-retour dans l'échantillon. Cette méthode implique un alignement parfait des deux fibres optiques mais permet une installation plus facile de la canne de mesure (fibre que d'un côté).

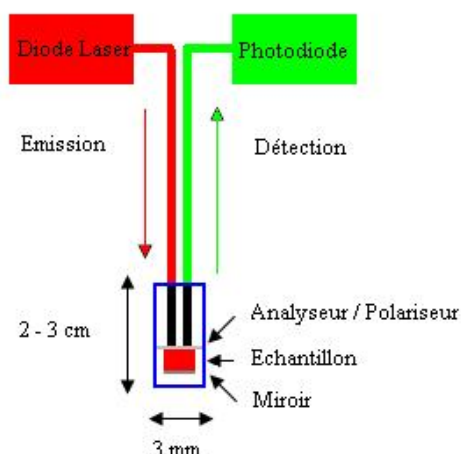


FIGURE 1.19 – Schéma de principe de la mesure de la rotation Faraday d'un cristal de CdS sous champ Mégagauss.

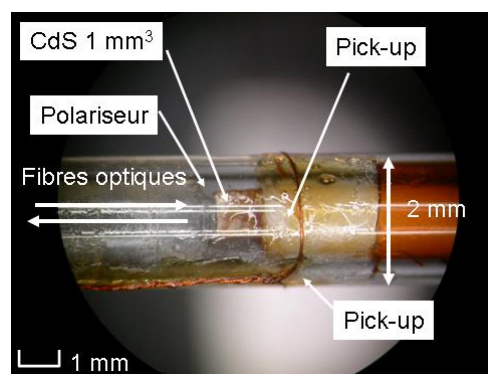


FIGURE 1.20 – Sonde de mesure de la rotation de la lumière incidente polarisée sous l'effet d'un champ magnétique.

La mesure du champ magnétique, grâce à l'effet Faraday, présente l'avantage d'utiliser un signal optique seul (pas de perturbation électromagnétique) mais implique une forte réduction du volume expérimental ainsi que la protection optique de la fibre optique (flash lumineux).

La figure 1.21a montre le résultat que nous avons obtenu avec la sonde de la figure 1.20. La figure 1.21b a été obtenu en utilisant une configuration plus simple (polariseur + échantillon + analyseur) sans réflexion (cristal sans dépôt).

1.5.2 Cage de Faraday

La configuration expérimentale, qui sera décrite dans la partie 2.1.2, utilisant un faisceau libre (air) a nécessité une optimisation. En effet, à cause de la diffusion dans l'air et de la divergence du faisceau infrarouge, il est nécessaire de rapprocher le détecteur de la bobine pour maximiser le signal. Afin d'éviter toute modification importante dans la structure principale (cage de Faraday principale), nous avons construit une double virole, schématisée sur la figure 1.22. Les deux viroles (cylindres roulés et soudés) illustrées sur la figure

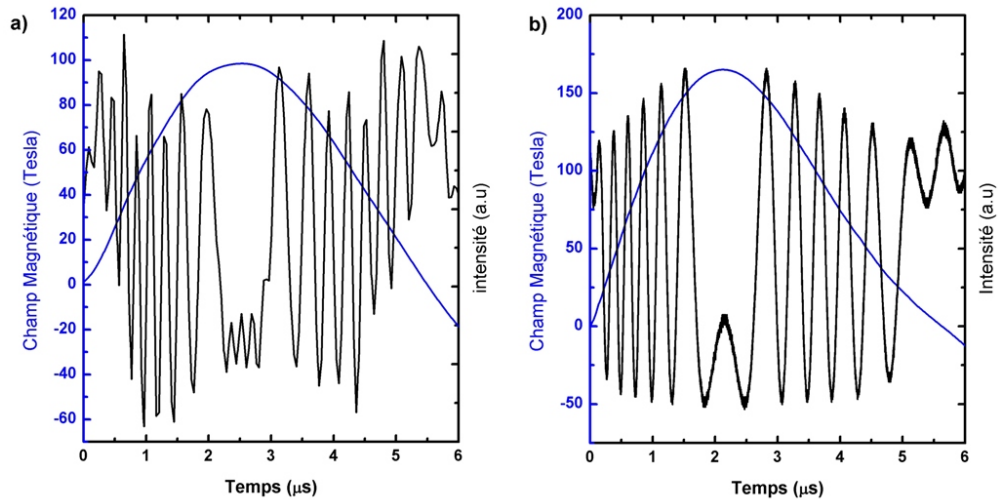


FIGURE 1.21 – a) Signal de transmission obtenu par réflexion dans un cristal de CdS à 633 nm dans une bobine de 12 mm à 35 kV obtenu avec la sonde de la figure 1.20 et échantillonné à 25 MHz. b) Signal de transmission directe (sans réflexion) dans un cristal de CdS à 633 nm dans une bobine de 7 mm à 40 kV échantillonné à 5 GHz. Le champ magnétique est en bleu (échelle de gauche) et le signal optique en noir (échelle de droite).

1.23 sont en aluminium/magnésium, AW-5083. La première est une extension de la cage de Faraday principale. La deuxième est la cage de Faraday dans laquelle sont placés le détecteur et l'amplificateur. Le but de cette cage est d'avoir une atténuation de la perturbation créée par le déclenchement supérieure à 100 dB entre 10 kHz et 100 MHz.

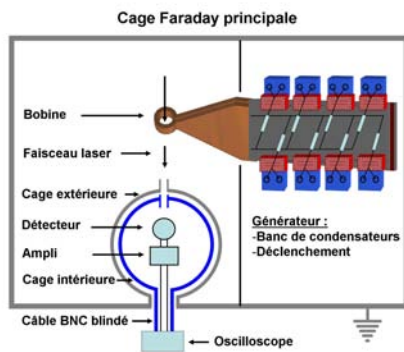


FIGURE 1.22 – Schéma montrant la cage de Faraday principale ainsi que les viroles.



FIGURE 1.23 – Photographie illustrant la double virole "in-situ". Cet ensemble ainsi que le support pour les miroirs est posé sur des bases ancrés dans le sol, indépendamment de la cage de Faraday principale.

L'efficacité globale d'un blindage s'exprime en décibels tel que [Heitzmann 1980] :

$$S_E = R + A + B = 10 \log \frac{P_1}{P_2} \quad (1.43)$$

où, S_E est l'efficacité globale, R la perte par réflexion, A la perte par absorption et B le facteur de correction (négligeable si $A > 10$ dB). En considérant une source électromagnétique à une distance de 1 mètre, la réflexion (en décibels) s'exprime [Heitzmann 1980] :

$$R = 74.6 - 10 \log \frac{\mu_r}{f G r^2} \quad (1.44)$$

où, μ_r est la perméabilité relative, f la fréquence exprimée en MHz et G la conductivité relative par rapport au cuivre. Les valeurs pour l'alliage utilisé, sont $\mu_r = 1$ et $G = 0.27$. La valeur d'atténuation par réflexion est donc de 48 dB à 10 kHz et de 88 dB à 100 MHz. L'absorption dépend de l'épaisseur e en mm du matériau traversé. Elle s'exprime [Heitzmann 1980] :

$$A = 1314.3 e \sqrt{f \mu_r G} \quad (1.45)$$

Pour une épaisseur de 8 mm, l'atténuation par absorption atteint 55 dB à 10 kHz et supérieure à 6000 dB à 100 MHz.

Il est à noter que les ouvertures dans le blindage diminuent fortement la protection. Pour faire passer le faisceau laser, il faut donc placer des tubes travaillant en dessous de leur fréquence de coupure, f_c (en MHz). On peut calculer l'atténuation, A , en fonction de la plus grande distance d'ouverture d (en cm) et de la longueur l du tube (en cm) pour des fréquences inférieures à 400 MHz [Heitzmann 1980].

$$A_{trou} = 27.3 \frac{l}{d} \text{ et } f_c = \frac{15000}{d} \quad (1.46)$$

Pour atteindre une valeur d'atténuation de 100 dB, il est nécessaire de placer des tubes d'une longueur quatre fois plus importante que leur diamètre. La figure 1.24 montre l'effet des couches successives de blindage sur la connexion entre la cage intérieure et le passage à travers la cage principale. On distingue le bruit de base de l'oscilloscope (calibre 10 mV, courbe noire et calibre 5 mV autres) et le bruit créé par le déclenchement (à partir de $t=0.5$ μ s). Un treillis en cuivre étamé et trois couches successives d'aluminium ont été nécessaires. On remarque que le bruit est très peu atténué entre les 2 et 3 couches d'aluminium, le bruit résiduel est donc causé par l'ouverture du faisceau laser. Ce bruit résiduel (\sim mV) est à comparer avec le bruit enregistré sur l'oscilloscope (\sim V) sans amplificateur et sans blindage électromagnétique (voir figure 1.10a).

Cet assemblage nous a permis de mesurer les transitions optiques dès le début du champ magnétique sans subir les perturbations liées au déclenchement.

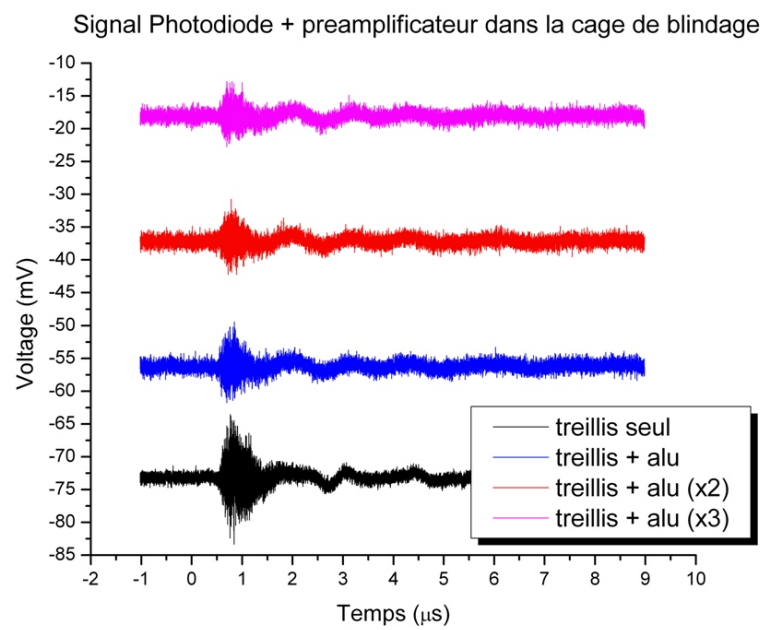


FIGURE 1.24 – Mesure du bruit du déclencheur enregistré sur la photodiode couplé à un préamplificateur (x14) dans la double cage de Faraday. Les courbes montrent l'effet des couches de blindage sur le signal du déclencheur, du moins blindé au plus blindé, de bas en haut respectivement.

Techniques expérimentales

Ce chapitre a pour but de décrire les méthodes de magnéto-transmission utilisées dans cette thèse, les méthodes de fabrication et les caractéristiques des échantillons de graphite exfolié et de graphène épitaxié utilisés.

2.1 Spectroscopie optique

La méthode de la magnéto-transmission est basée sur la mesure de la lumière transmise à travers un échantillon en fonction du champ magnétique. Il est possible d'utiliser une lumière large-bande ou monochromatique. Dans le premier cas, on mesure généralement un spectre énergétique pour différentes valeurs du champ magnétique (spectroscopie large-bande). Dans le deuxième cas, on mesure généralement l'intensité transmise par l'échantillon à une énergie donnée en fonction du champ magnétique (spectroscopie monochromatique). Afin d'illustrer les deux méthodes, un éventail ("fan-chart" en anglais) donnant la dépendance énergétique des transitions entre niveaux de Landau du graphite est représentée sur la figure 2.1.

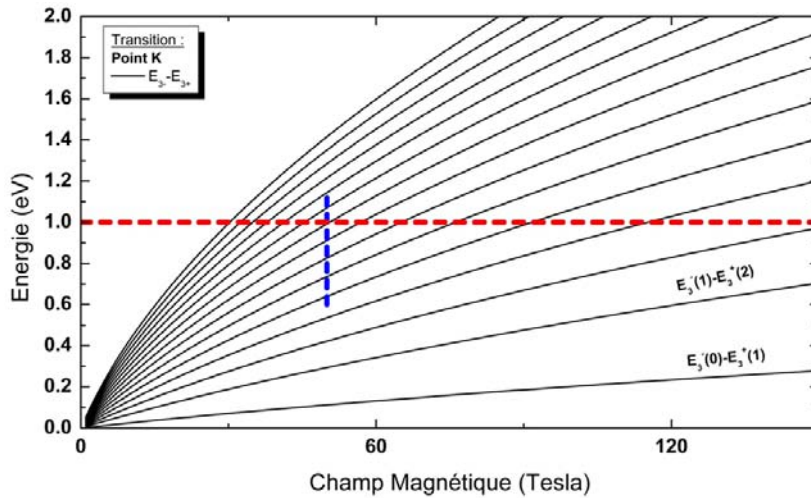


FIGURE 2.1 – Eventail de l'énergie des transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ au point **K** dans le graphite. La ligne pointillée bleue représente la spectroscopie résolue en énergie (0.6 à 1.15 eV) et la ligne pointillée rouge représente la spectroscopie monochromatique (1 eV).

La spectroscopie résolue en énergie à champ magnétique constant est représentée en bleu et la spectroscopie à énergie constante est représentée en rouge. En accumulant plusieurs spectres (en changeant le champ magnétique pour l'une et en changeant l'énergie pour l'autre), il est possible de mesurer la dépendance des transitions en fonction de l'énergie et du champ magnétique.

La première partie décrira la spectroscopie résolue en énergie utilisée avec le générateur 14 MJ du LNCMI et la deuxième partie décrira la spectroscopie à énergie constante utilisée avec le générateur Mégagauss.

Toutes les mesures ont été faites en configuration "Faraday" où le vecteur d'onde, \vec{k} , est parallèle au champ magnétique B et perpendiculaire aux plans de graphène/graphite.

2.1.1 Spectroscopie large-bande (visible, proche infrarouge)

Cette technique repose sur une source halogène large bande (visible-proche infrarouge) et un spectromètre couplé avec des détecteurs InGaAs qui permettent d'étudier une large bande énergétique (0.75 eV à 1.2 eV). Le schéma de l'expérience est indiqué sur la figure 2.2. Une canne de mesure, sur laquelle l'échantillon est fixé, est placée à l'intérieur d'un cryostat hélium. Le signal lumineux transmis par des fibres optiques est collimaté à travers l'échantillon via des lentilles puis enregistré sur le détecteur après diffraction dans le spectromètre. L'échantillon est placé au centre de la bobine qui crée le champ magnétique pulsé représenté sur la figure 2.3. La durée d'impulsion est de l'ordre de la centaine de microsecondes pour un champ magnétique de 60 T. Dans le but d'avoir un signal le plus précis possible, le champ magnétique doit être quasi-constant ($\Delta B < 1\%$) pendant toute la durée d'acquisition. Avec un temps d'intégration de 3 ms, cela permet l'acquisition d'une dizaine de spectres pendant le même tir (barres grises sur la figure 2.3).

Le signal "différentiel" est obtenu après soustraction de la transmission à champ magnétique nul pour normaliser le signal sur toute la gamme énergétique et pour conserver uniquement les transitions dépendant du champ magnétique. Il est ainsi possible de comparer directement l'intensité de chaque contribution et de mesurer la largeur de chaque pic d'absorption. La résolution est de l'ordre de quelques meV.

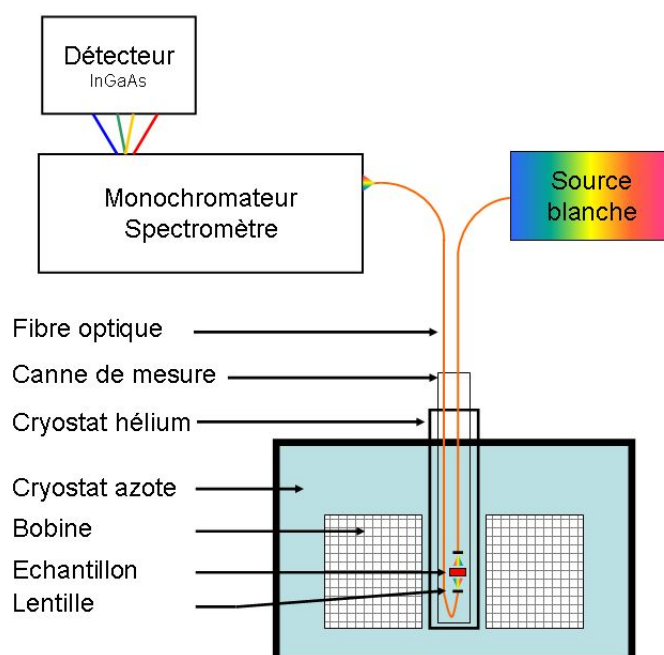
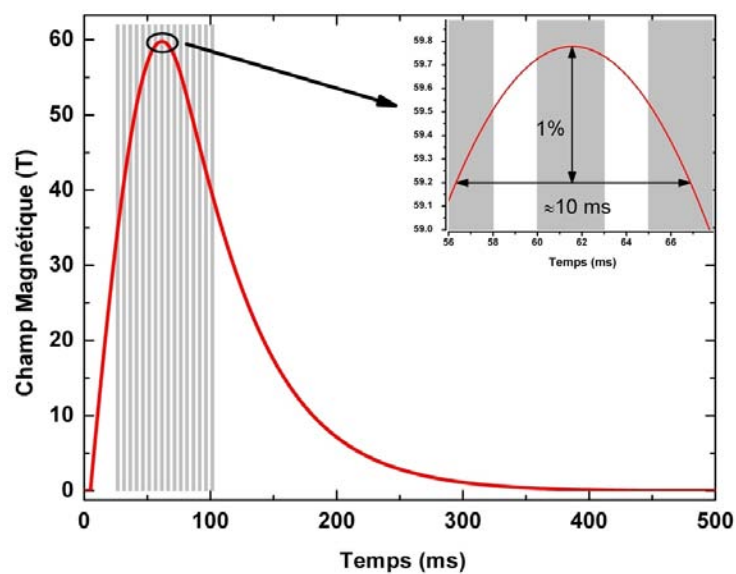


FIGURE 2.2 – Setup expérimental de la spectroscopie sous champ magnétique.

FIGURE 2.3 – Profil du champ magnétique (courbe rouge) du générateur 14 MJ du LNCMI et fenêtres d'intégration (3 ms) du spectromètre (barres grises). Le temps maximum d'intégration (10 ms) pour un ($\Delta B < 1\%$) est indiqué dans l'encadré.

2.1.2 Spectroscopie Monochromatique

Cette technique consiste à mesurer la transmission d'un laser (lumière monochromatique) à travers l'échantillon en fonction du champ magnétique.

Nous avons utilisé trois configurations liées à deux dispositifs expérimentaux :

faisceau air libre : Cette configuration illustrée sur la figure 2.4 a été utilisée pour les mesures avec le laser CO ($E \sim 200$ meV) pour lequel il n'existe pas de fibre optique. Pour limiter au maximum l'énergie absorbée sur l'échantillon, on utilise un chopper avec un rapport ouvert/fermé de 1 pour 200 à une fréquence de 18 Hz environ. En focalisant le faisceau à travers le chopper grâce à des miroirs paraboliques hors-axe, on obtient une impulsion de forme quasi-rectangulaire, stable d'une durée de 250 μs . Le faisceau est focalisé sur l'échantillon grâce à des miroirs sphériques concaves ayant un rayon de courbure de l'ordre du mètre. Un portique ancré dans le sol et découplé du générateur minimise les vibrations et facilite le réglage des miroirs. En intercalant un polariseur, une lame à retard quart d'onde et un analyseur, il est possible d'effectuer des mesures avec une lumière polarisée circulairement ($\sigma+$, $\sigma-$).

fibre optique : Pour les mesures non-polarisées dans le visible et le proche infrarouge, nous avons utilisé une canne, illustrée sur la figure 2.5 qui permet d'intercaler l'échantillon directement entre deux fibres optiques. Le diamètre de la fibre de la lumière incidente est de 400 μm et le diamètre de la fibre collectrice est de 500 μm . L'utilisation de diodes laser pulsées ainsi que le chopper pour les diodes continues a permis de minimiser l'énergie déposée sur l'échantillon.

mixte : Pour les mesures polarisées effectuées à 1064 nm, nous avons utilisé un faisceau libre pour la lumière incidente permettant d'intercaler le système de polarisation (polariseur+lame à retard). Le signal est ensuite récupéré par la fibre optique de 500 μm via l'analyseur.

Pour avoir une dépendance énergétique (spectroscopie) des niveaux de Landau, il est nécessaire de changer la longueur d'onde de la lumière incidente en utilisant, soit des raies différentes du laser, soit en utilisant des lasers différents et d'adapter le détecteur. A cause de la rapidité du tir, il est nécessaire d'utiliser des sources puissantes (> 30 mW) et des détecteurs ultra-rapides (≥ 100 MHz). La largeur en champ magnétique des transitions observables avec une détection à 100 MHz est comprise entre 1 et 2 Tesla au niveau du maximum de la dérivée du champ magnétique (bas champ).

Nous avons utilisé un laser (PL3 Edimburgh Instruments) fonctionnant avec du monoxyde de carbone dans une cavité fermée plan/concave mesuré avec une photodiode HgCdTe Electro-Optical Systems MCT10PV-0025 (100 MHz) refroidie à l'azote liquide. Une dizaine de raies caractéristiques entre 5.2 μm et 6 μm sont utilisables. Les mesures entre 730 nm et 980 nm ont été réalisées avec un laser Ti-Sapphire monochromatique accordable couplées à un détecteur rapide NewFocus 1801 (125 MHz). Les mesures à 1200nm et 1550 nm ont été réalisées avec des diodes laser de 3 W et 300 mW de puissance respectivement couplées à une diode InGaAs Thorlabs DET01CFC (100 MHz à 1 GHz).

Le tableau 2.1 résume les différentes sources utilisées, les détecteurs correspondant ainsi que la configuration expérimentale.

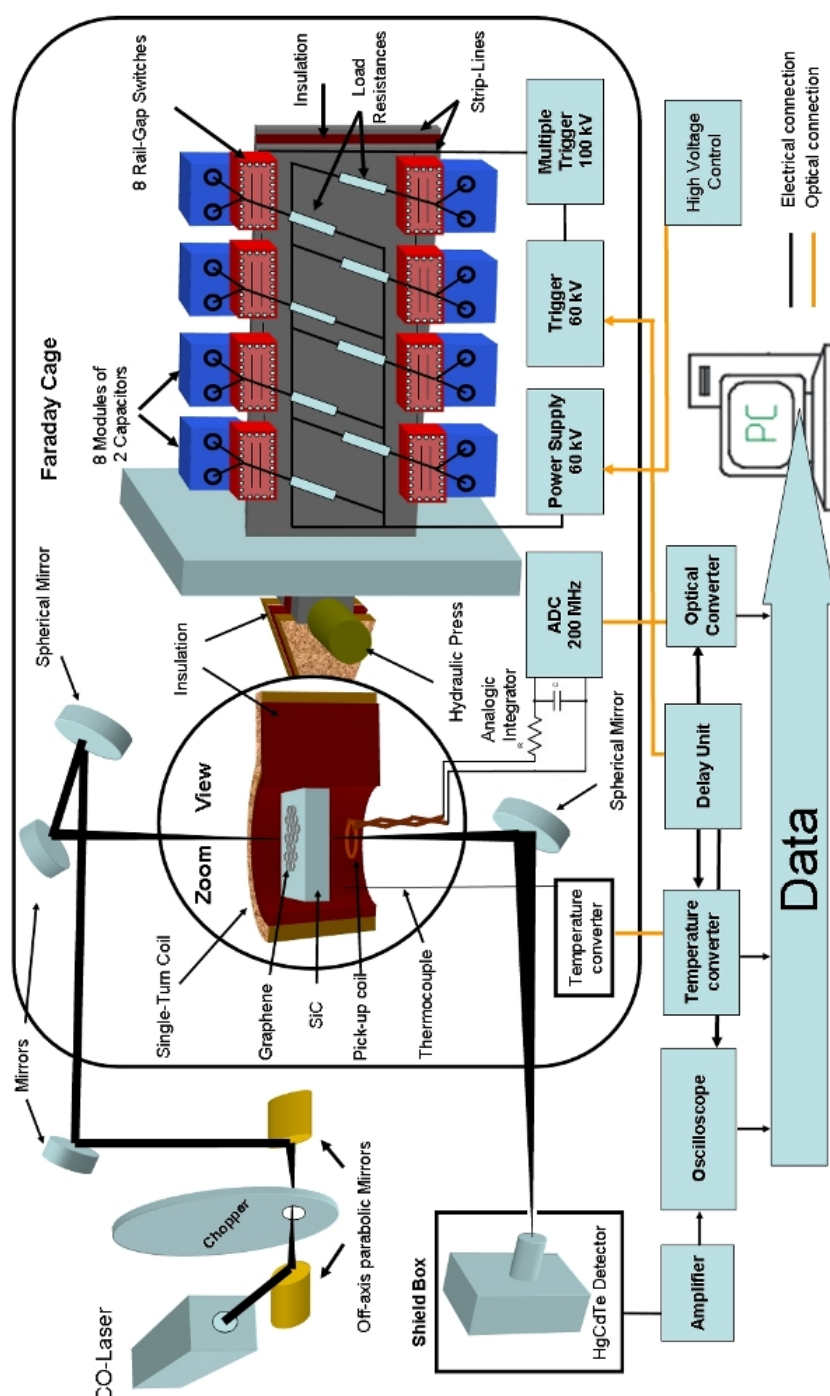


FIGURE 2.4 – Schéma expérimental de la mesure de spectroscopie monochromatique avec le générateur Megagauss. La partie droite représente le générateur Mégagauss. La partie gauche montre le chemin optique et la partie basse, les principaux éléments d'acquisition du signal et de déclenchement.

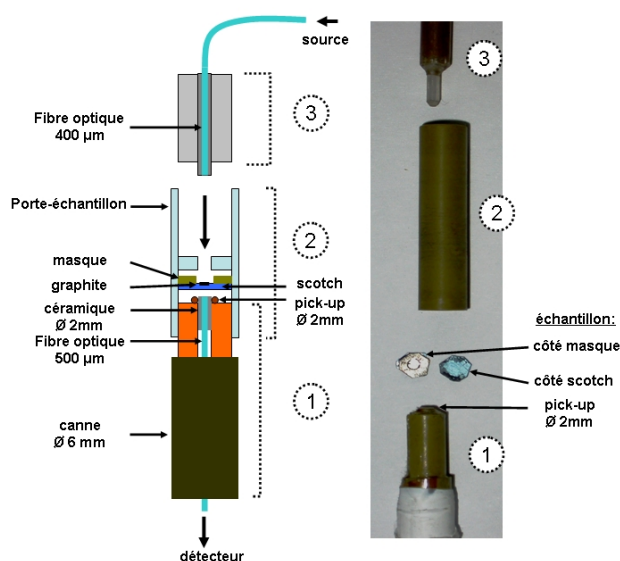


FIGURE 2.5 – Canne expérimentale (1) composée d'une fibre optique polie de 500 μm , pour recueillir le signal et insérée dans une céramique de 2 mm de diamètre. La bobine "pick-up" est enroulée autour de la céramique. Le porte-échantillon (2) permet de maintenir l'élément (échantillon + masque) plaqué sur la fibre et y insérer la fibre de 400 μm (3).

Longueur d'onde	Source	Puissance Max	Détecteur	Configuration
633 nm	diode laser	30 mW	New Focus 1801	fibre optique
670 nm	diode laser	30 mW	New Focus 1801	fibre optique
730-980 nm	Ti-Sapphire	5 W	New Focus 1801	fibre optique
1064 nm	laser Nd-YAG	100 mW	New Focus 1801	fibre optique et faisceau libre
1204 nm	BAL1112CM	3 W	DET01CFC	fibre optique
1550 nm	FPL1055T	300 mW	DET01CFC	fibre optique
5 μm -6 μm	laser CO	2 W	MCT10PV-0025	faisceau libre

TABLE 2.1 – Configurations optiques des mesures. Les mesures "faisceau libre" correspondent au dispositif expérimental de la figure 2.4 et "fibre optique" au dispositif des figures 2.5

2.2 Les échantillons

2.2.1 Graphite cristallin

On distingue deux catégories de graphite, le graphite artificiel et le graphite naturel. Le graphite artificiel est obtenu par pyrolyse. Plusieurs qualités existent. Le "Kish" et HOPG (Highly Oriented Pyrolytic Graphite) sont les plus purs et possèdent un très bon alignement selon l'axe c. C'est à dire que l'empilement ABA est respecté avec une déviation inférieure à 1° . Le graphite naturel est extrait de minerai sous trois formes, amorphe, en paillettes et cristalline, de la moins bonne à la meilleure qualité (tailles de cristaux, teneur en carbone, défaut du cristal) respectivement. Nous avons utilisé du graphite naturel cristallin exfolié. Ce type de graphite se trouve dans des filons de minerai formés généralement par des sources hydrothermales. La taille des cristaux est supérieure à la centaine de microns et la pureté de l'ordre de 99% de carbone. De part leur formation naturelle à haute température et à fortes pressions, l'empilement ABA est majoritaire. Les cristaux utilisés dans cette thèse d'une épaisseur inférieure à 100 nm devront présenter les propriétés les plus proches du graphite théorique (empilement ABA parfait).

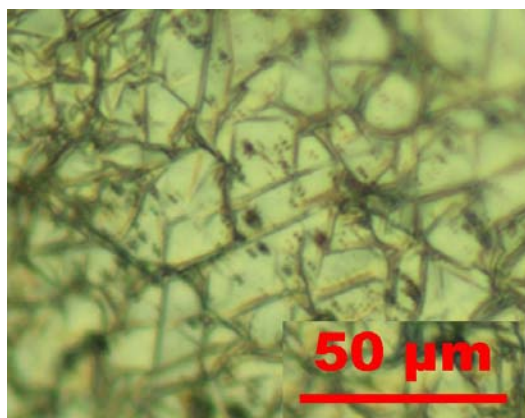


FIGURE 2.6 – Image obtenue au microscope optique d'un échantillon exfolié de graphite naturel après plusieurs tirs. Les cassures observées n'ont pas influencé les résultats.

La figure 2.6 montre une image au microscope optique de l'échantillon obtenu par exfoliations successives sur du ruban adhésif. Les cristaux ont été choisis avec comme contrainte une transmission absolue (comparée au substrat seul) de l'ordre de 10-20% pour permettre la mesure et une taille quasi-homogène (microscope optique) de l'ordre du millimètre.

Le graphite, empilement ABA de feuillets en "nid d'abeilles" d'atomes de carbone, est un système regroupant à la fois les caractéristiques des monocouches (graphène) et des mul-

ticouches (semblable au bicouche), décrites dans le chapitre 3. L'estimation de l'épaisseur du graphite est importante car elle permet de s'assurer que les mesures effectuées caractérisent un empilement "infini" de couches de graphène. En effet, les recherches théoriques [Koshino 2008] montrent que le nombre de couches doit être supérieur à la vingtaine de couches pour que le système soit considéré comme du graphite. Une estimation de l'épaisseur doit nous assurer que le signal transmis traverse un nombre de couches suffisantes ($\gg 20$).

Pour mesurer cette épaisseur, nous avons utilisé deux techniques, donnant une estimation minimale et maximale du nombre de couches traversées.

La première méthode consiste à mesurer la transmission de l'échantillon. Nous nous appuyons sur la valeur théorique [Ando 2002] et mesurée [Nair 2008] selon le modèle de la conductance universelle. La conductivité optique par couche de graphène, $\sigma = \frac{\pi G_0}{4}$ est indépendante de la fréquence (visible, proche-infrarouge) et dépend du quantum de conductance, $G_0 = \frac{2e^2}{h}$. L'absorbance par couche (film mince), s'exprime alors en fonction de la constante de structure fine, $\pi\alpha = 2.293\%$ et $\alpha = \frac{e^2}{\hbar c}$ [Kuzmenko 2008].

Cependant, il existe des contraintes sur l'utilisation de ces formules dans les résultats obtenus avec le graphite :

- Homogénéité

Les cristaux ne sont pas homogènes (superposition, ondulation, cassure, vide). Le signal est donc moyenné. On peut considérer la transmission minimale ($\sim 30\%$) obtenue à 229 meV et ~ 100 T. Cela signifie qu'au moins 70% du faisceau passe à travers l'échantillon de graphite. On peut calculer la transmission corrigée ($T_{corrigé} = T_{max} * 1/0.7$).

- Réflexion

L'épaisseur de graphite est de l'ordre de la profondeur de pénétration. Elle s'exprime :

$$\delta = \frac{1}{\pi} \sqrt{\frac{\lambda a_0}{\alpha}} \quad (2.1)$$

où, λ est la longueur d'onde, $a_0 = 0.335$ nm la distance inter-couche et $\alpha = \frac{e^2}{\hbar c}$ la constante de structure fine.

Elle atteint ~ 150 couches à 550 nm et ~ 400 à 5 microns. La réflexion n'est donc plus négligeable. La valeur de la transmission par couche diminue. A 5 microns, l'approximation de la couche mince reste valable.

- Transitions inter-bandes

Les transitions inter-bandes ($E_{2,3} \rightarrow E_{3,1}$) sont autorisées pour une énergie supérieure à $2\gamma_1 (\sim 0.8$ eV). L'absorption par couche augmente (augmentation de la conductance). On utilise donc les données obtenues à 5 μm (200 meV $<$ 800 meV).

La transmission d'une monocouche issue des équations de Fresnel (film mince) donne [Skulason 2010, Kuzmenko 2008] :

$$T = 1 - Z_0 G \quad (2.2)$$

où, $Z_0 = 377 \Omega$ est l'impédance caractéristique du vide, G la conductance exprimée en Siemens (S).

On peut donner une valeur moyenne minimale du nombre de couches :

$$n_{couche} = \frac{\ln(T_{max} * 1/0.7)}{\ln(1 - \pi\alpha)} = \frac{\ln(0.2 * 1/0.7)}{\ln(1 - 0.02293)} = 54 \text{ couches} \quad (2.3)$$

La deuxième méthode a utilisé une microscopie à force atomique (AFM). Les erreurs possibles sont :

- Homogénéité

Les cristaux ne sont pas homogènes (superposition, ondulation, cassure, vide). La surface scannée pendant une mesure est de $100\mu m \times 100\mu m$. On est obligé de faire un scan sur le bord de l'échantillon ou de part et d'autre d'une cassure.

- Impuretés

L'échantillon ne contient pas que du carbone (colle du substrat + impuretés). Les impuretés se superposent à l'épaisseur de graphite. La valeur obtenue est une valeur maximale.

On observe des épaisseurs de l'ordre de 50 à 100 nm pour les cristaux présentant un profil plat (non déformés). Cela correspond à 150 à 300 couches de graphène.

Les échantillons de graphite utilisés ont des épaisseurs moyennes comprises entre 50 et 300 couches, largement supérieur à la limite théorique (20 couches).

Il est important de noter qu'après plusieurs tirs, même si les cristaux sont morcelés (figure 2.6), les mesures sont reproductibles. La taille des cristaux reste donc largement supérieure à la longueur magnétique ($\sim 5 \mu m \gg \sqrt{\frac{h}{eB}} = 8 \text{ nm}$ à 10 Tesla) et n'influencent pas les résultats.

2.2.2 Graphène épitaxié sur Carbure de Silicium (SiC)

Pour fabriquer le graphène épitaxié sur du carbure de Silicium (SiC), on cristallise les atomes de carbone en sublimant les atomes de silicium à hautes températures et dans le

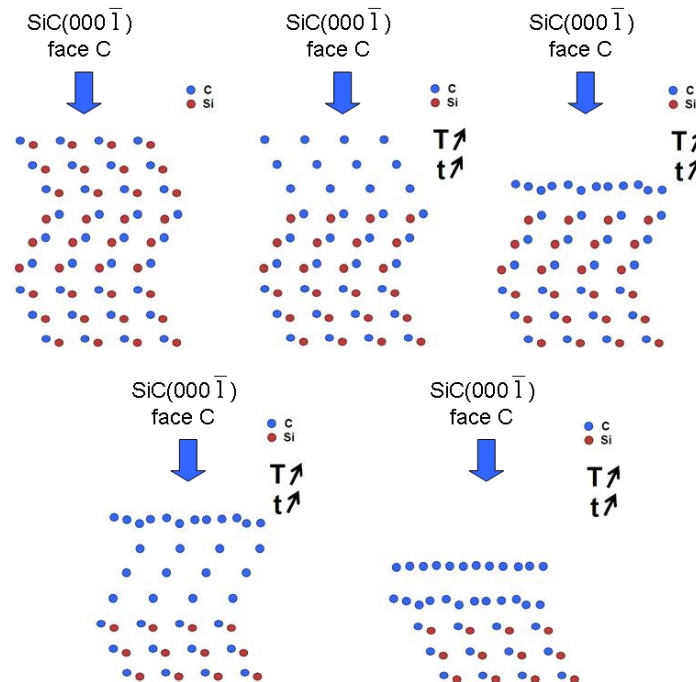


FIGURE 2.7 – Etapes de fabrication (de gauche à droite) du graphène épitaxié sur du carbure de silicium sur la face carbone. Au fur et à mesure de l'augmentation de la température, il y a sublimation des atomes de silicium et cristallisation des atomes de carbone en monocouche de graphène. La couche à l'interface du substrat est fortement dopée et les couches suivantes sont quasiment découplées électroniquement [Varchon 2008].

vide. Il existe deux types d'"épitaxie" sur SiC [Varchon 2008], sur la face Silicium, qui permet d'obtenir des échantillons très fins (une à quelques couches) mais fortement dopés et sur la face Carbone, qui permet d'obtenir des échantillons plus épais (jusqu'à 100 couches) où seule la première couche (interface) est fortement dopée. De plus, les couches suivantes sont découplées électroniquement car elles sont tournées l'une par rapport à l'autre. Il a été observé un comportement monocouche dans ce type d'échantillon [Plochocka 2008].

La figure 2.7 montre les étapes de fabrication.

2.2.2.1 Le graphène épitaxié d'Atlanta

Il a été fabriqué par décomposition thermique sous ultra-vide par l'équipe de W. De Heer et C. Berger au Georgia Institute à Atlanta [Berger 2004, Berger 2006].

Les images 2.8 et 2.9 montrent les images de l'échantillon d'Atlanta obtenues au microscope optique. On observe les flocons de graphène sur la face carbone. Le graphène possède

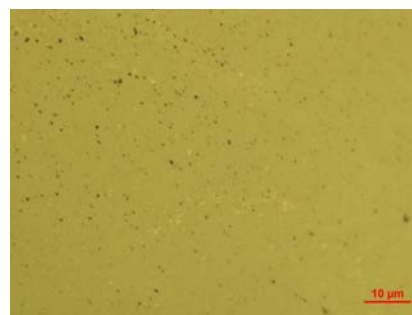
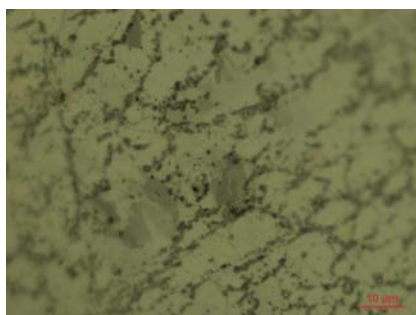


FIGURE 2.8 – Image obtenue au microscope optique de la face épitaxiée (carbone) de l'échantillon de graphène épitaxié d'Atlanta. FIGURE 2.9 – Image obtenue au microscope optique de la face non épitaxié (silicium) de l'échantillon de graphène épitaxié d'Atlanta.

des taille de l'ordre de la dizaine de micromètres pour les plus gros. Les contrastes observés correspondent à différentes épaisseurs. Les mesures, déjà effectués sur ce même échantillon, montrent les caractéristiques particulières des monocouches de graphène [Plochocka 2008]. Les mesures Raman [de Heer 2007, Faugeras 2008] montrent l'existence de graphite et également la forte disparité sur les épaisseurs (70 à 100 couches). Enfin, la présence d'inclusions de bicouches de graphène non dopés a également été mise en évidence [Orlita 2011].

2.2.2.2 Le graphène d'ITME

Le deuxième échantillon de graphène épitaxié a été fabriqué à Varsovie par l'équipe de Strupinski [Strupinski 2011]. Cette équipe a développé une méthode de fabrication de graphène sur SiC sur la face silicium par dépôt chimique en phase vapeur (CVD) de propane. Cette nouvelle technique a l'avantage par rapport à la sublimation classique de pouvoir fabriquer des épaisseurs très réduites de graphène avec une meilleure mobilité.

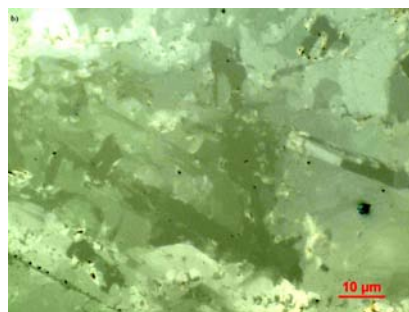


FIGURE 2.10 – a) Image obtenue au microscope optique de la face épitaxiée de l'échantillon de graphène épitaxié de Varsovie. b) Même image avec un contraste renforcé.

La figure 2.10 a) montre une image obtenue au microscope optique et la figure b) montre la même image avec un contraste renforcé. Les zones les plus claires correspondent à la plus petite épaisseur et les plus sombres correspondent à la plus grande épaisseur. On remarque que la quasi-totalité de cette partie de l'échantillon possède un contraste non minimum. Cela signifie que cet échantillon possède une grande densité de cristaux de graphène multicouches.

Propriétés du graphène/graphite

Par son épaisseur monoatomique, le graphène présente des propriétés électroniques en 2 dimensions. Grâce à leur structure en nid d'abeille commune avec le graphite, il sert de base à sa description. En effet, le graphite est construit en ajoutant les couplages inter-couches engendrés par l'empilement successif de graphène. De nombreuses revues ont été écrites sur le sujet [Castro Neto 2009, Orlita 2010, Das Sarma 2011, Goerbig 2011, Dresselhaus 2012].

Dans ce chapitre, je décrirai les principales caractéristiques du graphène pour introduire la complexité du graphite. Trois parties permettront de comprendre les résultats de spectroscopie optique du graphène/graphite sous champ magnétique. Tout d'abord, la structure de bande définira les propriétés électroniques à champ nul de ces matériaux et leur spécificité dans la gamme d'énergie étudiée ($E < 2$ eV). Ensuite, je présenterai la modification apportée à cette structure électronique (niveaux de Landau) lors de l'application d'un champ magnétique perpendiculaire au plan de graphène/graphite. Enfin, j'exposerai les différentes transitions optiques régies par les règles de sélection.

3.1 Les propriétés du graphène

3.1.1 La structure de bande

Le graphène est un assemblage hexagonale d'atomes de carbone. Il est composé d'une seule couche d'atomes, ce qui lui confère des propriétés bidimensionnelles (2D). Une première description théorique faite par Wallace en 1947 décrit les propriétés électroniques du graphite à partir d'une seule couche [Wallace 1947].

La structure électronique de l'atome de carbone est $1s^2 2s^2 2p^2$, il possède donc quatre électrons de valence. L'hybridation donne 3 orbitales sp^2 et une orbitale $2p_z$. Les premières sont orientées à 120° dans le plan pour former les bandes liantes σ et anti-liantes σ^* qui donnent la cohésion de la structure en nid d'abeilles. Chaque atome de carbone partage trois électrons avec les atomes voisins pour remplir ces trois nouvelles orbitales. La quatrième forme les bandes π et π^* . Par la suite, seules les bandes π et π^* seront décrites car les bandes σ et σ^* possèdent des énergies de liaison de plusieurs eV trop importantes par rapport aux photons mis en jeu dans cette thèse.

La figure 3.1 représente la structure de bande calculée selon le modèle des liaisons fortes du graphène sur la première zone de Brillouin [Das Sarma 2011]. Les bandes π et π^* se touchent au niveau de Fermi aux points \mathbf{K} et \mathbf{K}' . Les points \mathbf{K} (\mathbf{K}') sont tous équivalents par simple translation de vecteurs de l'espace réciproque. La différence entre les points \mathbf{K} et \mathbf{K}' donnent lieu à une dégénérescence dite de "vallée".

Au voisinage des points \mathbf{K} et \mathbf{K}' (i.e $\vec{k} = \vec{K} + \delta\vec{k}$), la dispersion est linéaire avec le vecteur d'onde $\delta\vec{k}$ et s'écrit [Wallace 1947] :

$$E(k) \approx \pm \hbar v_F |\delta\vec{k}| \quad \text{et} \quad v_F = \frac{\sqrt{3}\gamma_0 a_0}{2\hbar} \quad (3.1)$$

où, v_F est la vitesse de Fermi, γ_0 l'intégrale de saut avec le plus proche voisin, $a_0 = 1.42$ Å la distance inter-atomique et $|\delta\vec{k}| \ll |\vec{K}|$.

En l'absence de dopage, le niveau de Fermi se trouve au point de Dirac, le graphène est donc un semi-métal ou un semiconducteur à gap nul. La vitesse de Fermi dans le graphène est constante au voisinage du point de Dirac ($\delta\vec{k} = 0$). On peut décrire les électrons dans le graphène avec l'équation de Dirac en considérant des fermions de masse nulle. La relation de dispersion est alors analogue à l'équation de l'énergie relativiste, E , d'une particule sans masse, linéaire avec l'impulsion p et la célérité c ($E = \pm pc$). Il suffit de remplacer la valeur de la célérité par la vitesse de Fermi v_F pour décrire les électrons dans le graphène proche du niveau de Fermi. Les électrons dans le graphène sont donc ultra-relativiste bien que leur vitesse soit de l'ordre de 10^6 m.s⁻¹ soit seulement 300 fois moins que la vitesse de la lumière dans le vide. Cette approximation reste valable dans une gamme d'énergie largement inférieure au paramètre $\gamma_0 = 3.15$ eV.

Les électrons ont des valeurs de mobilité μ_e supérieures à 10^4 cm².V⁻¹.s⁻¹ même à température ambiante [Chen 2008] soit environ 10 fois plus que le silicium [Canali 1975]. C'est une des propriétés qui font du graphène un candidat pour remplacer le silicium dans l'électronique.

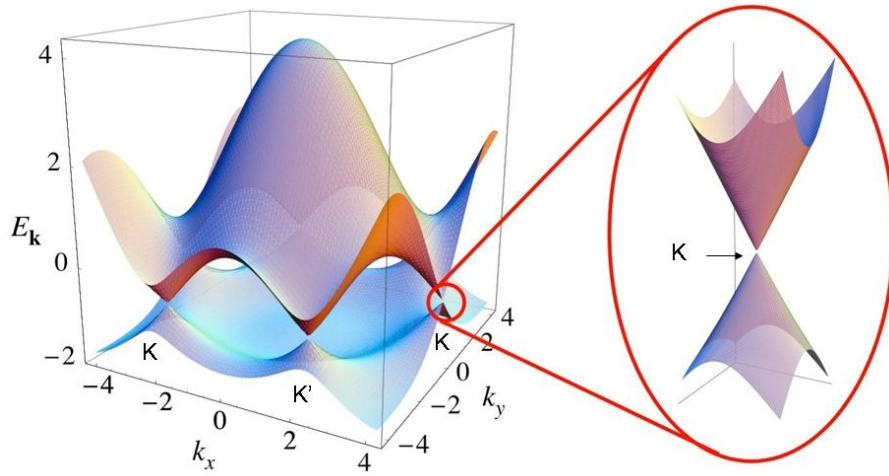


FIGURE 3.1 – Structure de bandes calculée selon le modèle des liaisons fortes en fonction de l'impulsion sur la première zone de Brillouin [Das Sarma 2011].

3.1.2 Niveaux de Landau

Les niveaux de Landau sont la conséquence de la quantification de l'énergie des états électroniques en fonction du champ magnétique B appliqué perpendiculairement au plan.

L'énergie de chaque niveau de Landau, illustrée sur la figure 3.2, s'exprime en fonction du champ magnétique [Wallace 1947] :

$$E_n = \text{sign}(n)v_f\sqrt{2\hbar eB|n|} \quad (3.2)$$

où, n ($n \in \mathbb{Z}$) le nombre quantique positif (négatif) désigne l'indice du niveau de Landau des électrons (trous).

Les niveaux de Landau dans le graphène ont des propriétés inhabituelles :

- une énergie proportionnelle à la racine carrée du champ magnétique, B .
- l'écart entre deux niveaux consécutifs de Landau n'est pas constant.
- l'existence d'un niveau "exotique" $n = 0$ à $E = 0$, constant avec le champ magnétique.
- le niveau $n = 0$ possède un mélange d'électrons et de trous.
- l'existence d'une dégénérescence ($g_s g_v = 4$), dite de "spin" ($g_s = 2$) et de "vallée" ($g_v = 2$).

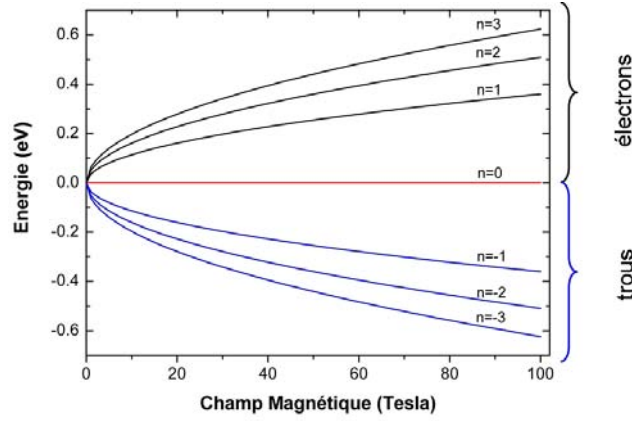


FIGURE 3.2 – Énergie des quatre premiers niveaux de Landau (électrons en noir et trous en bleu) dans le graphène. Le niveau $n = 0$ (mélange électrons et trous) est illustré en rouge.

3.1.3 Transitions optiques et règles de sélection

Les mesures optiques effectuées sous champ magnétique permettent d'étudier l'absorption des photons entre les niveaux de Landau, lorsque l'énergie correspond exactement à la différence entre deux états (L_n et $L_{n'}$). La conservation du moment angulaire impose une condition sur l'indice n du niveau de Landau de départ et l'indice n' du niveau d'arrivée. Cette condition appelée règle de sélection s'écrit :

$$|n'| - |n| = \pm 1 = \Delta n \quad (3.3)$$

Cette règle est spécifique au graphène car elle réunit en même temps les transitions intra-bandes et inter-bandes.

L'énergie des transitions s'écrit :

$$\Delta E = E_{|n'|} - E_{|n|} \quad (3.4)$$

On distingue trois types de transitions :

- **intra-bandes** ($\text{sign}(n) = \text{sign}(n')$) :

Elles concernent les transitions optiques d'une même bande.

L'énergie s'écrit :

$$\Delta E = v_f \sqrt{2\hbar e B} (\sqrt{|n'|} - \sqrt{|n|}) \quad (3.5)$$

- inter-bandes ($\text{sign}(n) = -\text{sign}(n')$) :

Elles concernent les transitions optiques entre différentes bandes.

L'énergie s'écrit :

$$\Delta E = v_f \sqrt{2\hbar e B} (\sqrt{|n'|} + \sqrt{|n|}) \quad (3.6)$$

- mixtes ($n = 0, -1$ et $n' = 1, 0$) :

Elles concernent les transitions impliquant le niveau $n = 0$, à la fois intra-bande et inter-bande.

L'énergie s'écrit :

$$\Delta E = v_f \sqrt{2\hbar e B} \quad (3.7)$$

Dans les gaz 2D conventionnels, la résonance cyclotron (\equiv transition *intra-bande* avec changement d'indice $\Delta n = \pm 1$) possède une énergie constante quel que soit l'indice n de l'état initial et est égale à $\hbar\omega_c$ où ω_c est la fréquence cyclotron. Notons aussi que les transitions *interbandes* dans les gaz 2D conventionnels ont un changement d'indice égale à $\Delta n = 0$.

Les différentes transitions entre les quatre premiers niveaux de Landau dans le graphène sont illustrées de façon schématique sur la figure 3.3. Chaque type de transitions (intra, inter, mixte) possède deux possibilités de changement d'indice $\Delta n = 1$ et $\Delta n = -1$. Leur énergie, pour les transitions intrabandes, est généralement égale. Pour les transitions interbandes et mixtes leurs énergies sont égales si les énergies des niveaux de Landau des électrons et des trous sont symétriques (figure 3.3 a)). Dans le cas d'une asymétrie électron-trou, on observe une différence d'énergie entre les deux changements d'indice ($\Delta n = 1$ et $\Delta n = -1$) qui peut être observée séparément en polarisant circulairement la lumière incidente ($\sigma+$ et $\sigma-$ respectivement), représentés sur la figure 3.3 b).

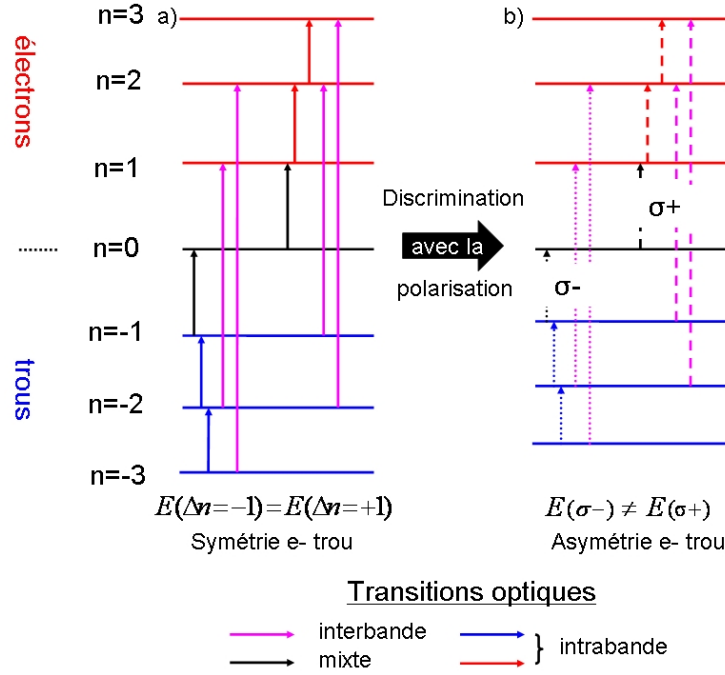


FIGURE 3.3 – Transitions entre les premiers niveaux de Landau ($n \leq 3$) dans le graphène : Le niveau $n = 0$ est un mélange de trous et d'électrons. a) Sans asymétrie électrons-trou, chaque type de transition (intra, inter, mixte) est dégénérée ($E(\Delta n = +1) = E(\Delta n = -1)$). b) Avec asymétrie, il est possible de discriminer les contributions $\Delta n = +1$ et $\Delta n = -1$ en polarisant circulairement ($\sigma+$, $\sigma-$) la lumière incidente.

3.2 Les propriétés du graphite

Le graphite est un empilement multiple de type "Bernal" (également appelé empilement ABA) [Bernal 1924] de feuillets de graphène. La description des propriétés part de l'étude de Wallace [Wallace 1947] qui considéra, le premier, l'empilement des couches de graphène en ajoutant les couplages intercouches. Les propriétés du graphite, sur le chemin **H-K-H**, soumis à un champ magnétique ($B \perp$ plans de graphène) ont été développées par Slonczewski, Weiss et McClure [Slonczewski 1958, McClure 1960] et regroupées sous l'appellation "modèle **SWM**" ou "modèle **SWMc**". Ce modèle est le plus complet et le plus utilisé aujourd'hui. Il existe également une description simplifiée de ce modèle en analogie avec le graphène bicouche, appelé "modèle du bicouche effectif" (**EBM**).

3.2.1 La structure de bande

L'étude des propriétés de la structure électronique du graphite, décrit dans le modèle **SWM**, exige la prise en compte de sept paramètres de couplage de liaisons fortes $\gamma_0, \dots, \gamma_5, \Delta$,

illustrés sur la figure 3.4.

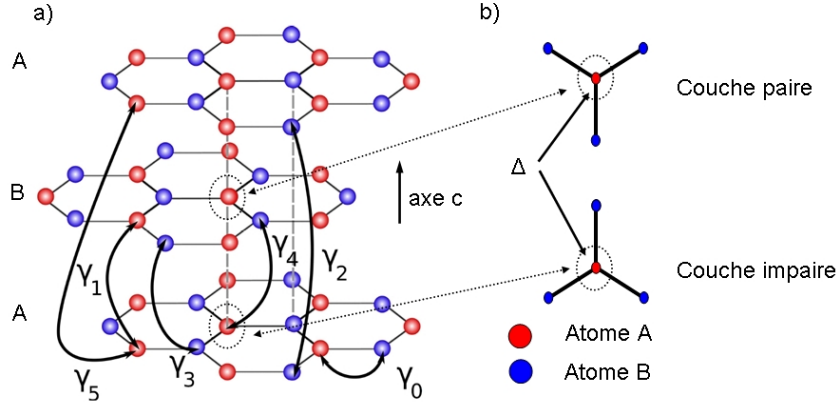


FIGURE 3.4 – a) Empilement ABA du graphite avec les paramètres γ_i d'intégrale de saut du modèle SWM b) Inéquivalence, Δ , du potentiel cristallin entre les atomes A (couche paire, couche impaire)

Il existe quatre bandes E_1 , E_2 et $E_{3\pm}$ qui est deux fois dégénérée à champ nul :

$$E_1 = \Delta + \gamma_1 \Gamma + \frac{1}{2} \gamma_5 \Gamma^2 \quad (3.8)$$

$$E_2 = \Delta - \gamma_1 \Gamma + \frac{1}{2} \gamma_5 \Gamma^2 \quad (3.9)$$

$$E_{3\pm} = \frac{1}{2} \gamma_2 \Gamma^2 \quad (3.10)$$

où,

$$\Gamma = 2 \cos\left(\frac{c_0 k_z}{2}\right) \quad (3.11)$$

avec $c_0 = 3.35 \text{ \AA}$ la distance entre les plans.

Le paramètre Γ matérialise l'extension en 3 dimensions de la zone de Brillouin du graphène (dispersion selon l'axe z). La figure 3.5(b et c) représente la dispersion énergétique selon l'impulsion interplan (k_z) et la dispersion énergétique dans le plan ($\kappa = (k_x, k_y)$) aux points **K** et **H**. L'énergie de la bande E_3 croise le niveau de Fermi environ au milieu des points **H** et **K**. Le graphite est un semi-métal à champ nul, composé de petites poches d'électrons aux alentours du point **K** et de poches de trous aux alentours du point **H**.

Au point **H**, correspondant au saut de l'électron d'un atome A d'une couche impaire vers l'atome A d'une couche paire située au dessus, on peut faire l'analogie avec le point **K** du

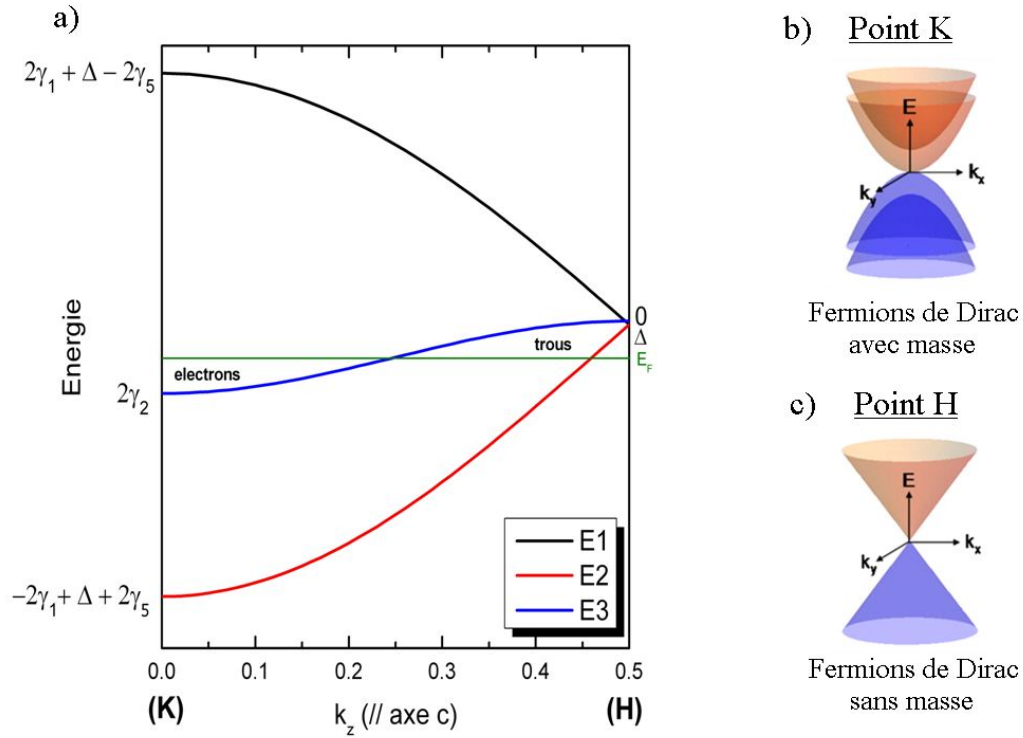


FIGURE 3.5 – a) Dispersion du graphite en fonction de k_z (// c) calculée avec l'hamiltonien de Nakao [Nakao 1976] : Pour des raisons de lisibilité, les paramètres γ_1 , γ_2 et Δ ont été multipliés par un facteur cinq. b) et c) Dispersion énergétique dans le plan ($\kappa = (k_x, k_y)$) au point **H** et au point **K**

graphène (fermions de masse nulle) [Li 2007, Orlita 2008]. La seule différence provient de Δ , l'inéquivalence du potentiel cristallin entre les atomes A d'une couche impaire et les atomes A d'une couche paire. Elle correspond également à la différence de potentiel entre les atomes A et B d'une même couche.

Au point **K**, les électrons se comportent comme des fermions de Dirac massifs [Li 2007, Orlita 2009]. La relation de dispersion est parabolique à basse énergie mais qui tend vers une dispersion linéaire (relativiste) à haute énergie, en analogie avec le graphène bicouche. Avec cet empilement (bicouche), il est possible en appliquant une tension de grille d'ouvrir un gap (bande interdite) [Ohta 2006], ce qui représente un potentiel pour l'application dans l'électronique (transistor).

Le graphite est donc un matériau riche en physique possédant à la fois les propriétés du graphène (particules de Dirac sans masse) et du bicouche (particules de Dirac massives).

3.2.2 Niveau de Landau :

3.2.2.1 Le modèle SWM

En présence d'un champ magnétique externe, parallèle à l'axe c , il y a quantification des bandes E_1 , E_2 et $E_{3\pm}$ en niveaux de Landau. On lève la dégénérescence de la bande E_3 qui forme deux bandes distinctes E_{3-} et E_{3+} . Chaque bande quantifiée E_1 , E_2 et E_{3-} et E_{3+} possède un indice propre $n \in \mathbb{N}$ et $n \in \mathbb{N}^*$ respectivement. De plus, il existe deux niveaux spéciaux $E_3(n=0)$ (3 fois dégénérés) et $E_3(n=-1)$ (1 fois dégénéré) à la fois peuplé de trous (au point **K**) et d'électrons (au point **H**) même à très fort champ magnétique ($B > 200$ T). L'énergie des niveaux de Landau de chaque bande sont les valeurs propres de la matrice de l'Hamiltonien suivant [Dresselhaus 1965, Nakao 1976] :

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} D_0(-1) & 0 & 0 & D_1(-1) & 0 & \dots \\ 0 & D_0(0) & 0 & 0 & D_1(0) & \\ 0 & 0 & D_0(1) & 0 & 0 & \dots \\ D_1^+(-1) & 0 & 0 & D_0(2) & 0 & \dots \\ 0 & D_1^+(0) & 0 & 0 & D_0(3) & \dots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

où les symboles D_0 et D_1 représentent des matrices 4x4 telles que :

$$D_0(n) = \begin{pmatrix} E_1 + \frac{\hbar^2 s}{2m_0} (n + \frac{1}{2}) \pm \frac{g\mu_B}{2} B & 0 & \frac{\sqrt{6}a_0}{4} \gamma_- \sqrt{ns} & -\frac{\sqrt{6}a_0}{4} \gamma_- \sqrt{(n+1)s} \\ 0 & E_2 + \frac{\hbar^2 s}{2m_0} (n + \frac{1}{2}) \pm \frac{g\mu_B}{2} B & -\frac{\sqrt{6}a_0}{4} \gamma_+ \sqrt{ns} & \frac{\sqrt{6}a_0}{4} \gamma_+ \sqrt{(n+1)s} \\ \frac{\sqrt{6}a_0}{4} \gamma_- \sqrt{ns} & -\frac{\sqrt{6}a_0}{4} \gamma_+ \sqrt{ns} & E_3 + \frac{\hbar^2 s}{2m_0} (n - \frac{1}{2}) \pm \frac{g\mu_B}{2} B & 0 \\ \frac{\sqrt{6}a_0}{4} \gamma_- \sqrt{(n+1)s} & \frac{\sqrt{6}a_0}{4} \gamma_+ \sqrt{(n+1)s} & 0 & E_3 + \frac{\hbar^2 s}{2m_0} (n + \frac{3}{2}) \pm \frac{g\mu_B}{2} B \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

et,

$$D_1(n) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{\sqrt{3}a_0}{2} \gamma_3 \Gamma \sqrt{(n+2)s} & 0 \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

où $\gamma_{\pm} = -\gamma_0 \pm \gamma_4 \Gamma$, $s = \frac{2eB}{\hbar}$, n est le nombre quantique, m_0 la masse de l'électron libre où, g le facteur de Landé, μ_B le magnéton de Bohr.

Le paramètre γ_3 couple les matrices $D_0(n)$ et $D_0(n \pm 3)$. La matrice à diagonaliser est alors infinie. Cependant il est possible de décomposer la matrice en trois sous-matrices couplant les indices (-1 modulo 3, 0 modulo 3 et 1 modulo 3).

Le terme avec γ_3 dans $D_1(n)$ est nul au point **H** ($\Gamma = 0$) et les valeurs propres définissant

les niveaux de Landau ($n \geq 0$) s'obtiennent analytiquement :

$$E_{3\pm}(n) = \frac{1}{2}\Delta \pm \frac{1}{2}\sqrt{\Delta^2 + 3ns\gamma_0^2 a_0^2} \quad (3.15a)$$

$$E_{1,2}(n) = \frac{1}{2}\Delta \pm \frac{1}{2}\sqrt{\Delta^2 + 3(n+1)s\gamma_0^2 a_0^2} \quad (3.15b)$$

Les termes de l'énergie cinétique de l'électron libre et de l'effet Zeeman ne sont pas indiqué pour des raisons de clarté et usuellement considérés négligeables. Le prochain chapitre étudiera leur importance sur les mesures de magnéto-transmission.

3.2.2.2 Le modèle EBM

Koshino et Ando [Koshino 2008] ont montré que l'on pouvait modéliser les propriétés du graphène multicouche en considérant uniquement le couplage intra-couche du plus proche voisin γ_0 et du paramètre de couplage inter-couche γ_1 . Il apparaît que le point **K** peut être décrit en utilisant la formule du graphène bicouche [McCann 2006] avec un paramètre de couplage modifié $\lambda_m \gamma_1$ ($\lambda_m \equiv \Gamma$ dans l'équation 3.11) au lieu de γ_1 . Tous les autres paramètres du modèle SWM, $\gamma_2, \gamma_3, \gamma_4, \gamma_5, \Delta$ sont égales à zéro. L'influence de ces paramètres sur l'énergie des niveaux de Landau est importante seulement à basse énergie ou peut être pris en compte dans le modèle. Le paramètre γ_3 est responsable de la corrugation ("trigonal warping"). Il entraîne un léger décalage de l'énergie des niveaux de Landau sauf pour des énergies inférieures à ~ 10 meV [Nakao 1976]. Le paramètre γ_4 , responsable de l'asymétrie e- trou, ne change pas le comportement des niveaux de Landau. Il peut être introduit en attribuant des vitesses de Fermi différentes pour chaque bande. Les paramètres de second plus proche voisin $2\gamma_2$ et $2\gamma_5$ décalent l'énergie des niveaux E_3 et $E_{1,2}$ à champ nul. Le paramètre Δ peut être en général négligé (\sim meV).

En appliquant un champ magnétique, on obtient les énergies des niveaux de Landau [Koshino 2008] :

$$\varepsilon_{n,\mu_{ebm},s} = \frac{s}{\sqrt{2}} \sqrt{(\lambda\gamma_1)^2 + (2n+1)\Delta_B^2 + \mu_{ebm} \sqrt{(\lambda\gamma_1)^4 + 2(2n+1)(\lambda\gamma_1)^2 \Delta_B^2 + \Delta_B^4}} \quad (3.16)$$

où, n est le nombre quantique magnétique, $\mu_{ebm} = \pm 1$ correspond à la bande supérieure et la bande inférieure respectivement, $s = \pm 1$ correspond à la bande d'électrons et de trous respectivement et $\Delta_B = v_F \sqrt{2e\hbar B}$.

Au point **H**, $\lambda_m = 0$, donc on obtient exactement les mêmes niveaux d'énergie que pour le graphène (équation 3.4). La différence avec le modèle SWM (équation 3.15) provient de la non prise en compte du paramètre Δ .

Au point **K**, les niveaux deviennent beaucoup plus faciles à calculer qu'avec le modèle SWM. La valeur de λ_m tend vers 2, sans toutefois l'atteindre, au fur et à mesure de l'augmentation du nombre de couches [Koshino 2008].

3.2.3 Transitions optiques et règles de sélection

Toutes les transitions entre les niveaux de Landau des quatres bandes (E_1, E_2, E_{3-}, E_{3+}) sont possibles sur tout le chemin **H-K-H**. Néanmoins, la densité d'états jointe (entre la bande de conduction et la bande de valence) étant maximale aux deux points de haute symétrie **H** et **K**, la contribution optique sera largement dominée par les transitions en ces deux points. Pour respecter la conservation de l'impulsion, chaque transition obéit à une règle de sélection (RS) entre l'indice n du niveau de départ et n' du niveau d'arrivée [Dresselhaus 1965].

$$|n'| - |n| = \pm 1 = \Delta n \quad (3.17)$$

Cette règle est identique à celle du graphène (voir équation 3.3) mais induit des différences sur le nombre de transitions (4 bandes au lieu de 2).

En prenant en compte le remplissage des niveaux, il existe quatre types de transitions interbandes possibles :

$$E_2 \rightarrow E_1 \quad E_{3-} \rightarrow E_{3+} \quad (3.18)$$

$$E_2 \rightarrow E_{3+} \quad E_{3-} \rightarrow E_1 \quad (3.19)$$

Au point **H**, les niveaux de Landau ont un comportement semblable aux niveaux de Landau au point **K**_{graphène} du graphène. Cependant, les transitions sont plus complexes à cause de la dégénérescence des bandes $E_{3+}^n = E_1^{n+1}$, et $E_{3-}^n = E_2^{n+1}$. En négligeant le paramètre Δ , il est possible d'exprimer les transitions interbandes du graphite en utilisant une règle de sélection apparente (RSA) pour les transitions observées dans le graphène.

On obtient alors trois types de transitions interbandes illustrées sur la figure 3.6 :

$\Delta n = \pm 1$ elles sont identiques à celle du graphène mais dégénérées deux fois. Elles sont indiquées en bleu.

$\Delta n = 0$ elles sont interdites dans le graphène. Elles sont indiquées en vert et correspondent aux transitions $E_{3-}^{n+1} \rightarrow E_1^n$ et $E_2^n \rightarrow E_{3+}^{n+1}$.

$\Delta n = \pm 2$ elles sont également interdites dans le graphène. Elles sont indiquées en rouge et correspondent aux vraies transitions $E_{3-}^n \rightarrow E_1^{n+1}$ et $E_2^{n+1} \rightarrow E_{3+}^n$.

La polarisation circulaire de la lumière incidente $\sigma+$ et $\sigma-$ permet séparer les composantes $\Delta n = +1, +2$ et $\Delta n = -1, -2$ respectivement. Les transitions interbandes $\Delta n = 0$ ne peuvent pas être différenciées. Il faut noter que les transitions interbandes $\Delta n = 0$ restent dégénérées même en présence d'une asymétrie électron-trou. Par contre, pour les transitions interbandes $\Delta n = \pm 1, \pm 2$, la présence d'une asymétrie électron-trou doit donner lieu à une levée de dégénérescence.

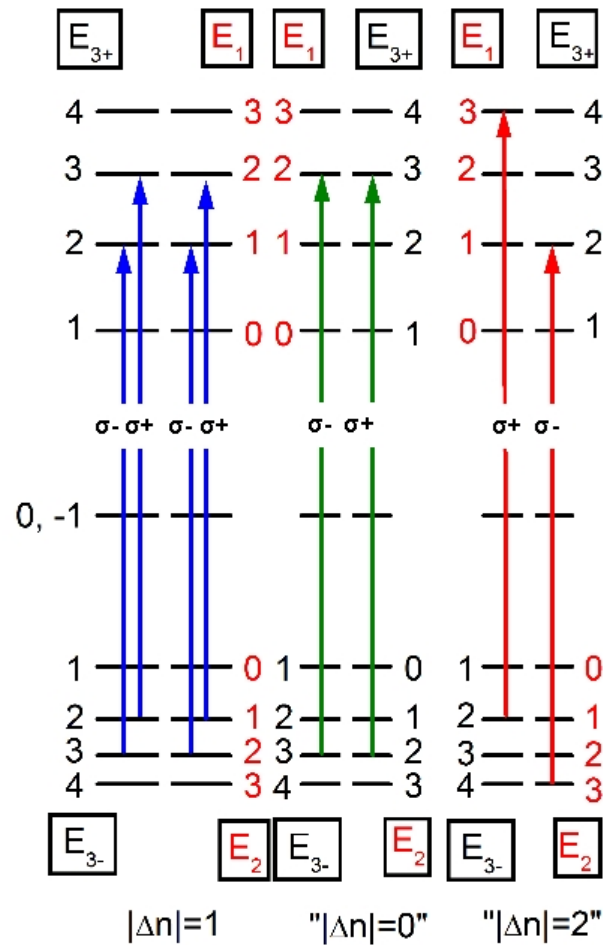


FIGURE 3.6 – Transitions entre les niveaux de Landau au point **H** dans le graphite : On distingue les transitions identiques au graphène (dégénérée deux fois), en bleue ($\Delta n = \pm 1$) et les transitions additionnelles avec une règle de sélection apparente en vert ($\Delta n = 0$) et rouge ($\Delta n = \pm 2$).

Au point **K**, les quatre bandes sont non dégénérées. En prenant en compte le remplissage des bandes, les transitions interbandes possibles, illustrées sur la figure 3.7, peuvent être classées en fonction de leur énergie :

$$E_{3-} \rightarrow E_{3+} : E > 2E_F.$$

$$E_{3-} \rightarrow E_1 \text{ et } E_2 \rightarrow E_{3+} : E > 2\gamma_1.$$

$$E_2 \rightarrow E_1 : E > 4\gamma_1.$$

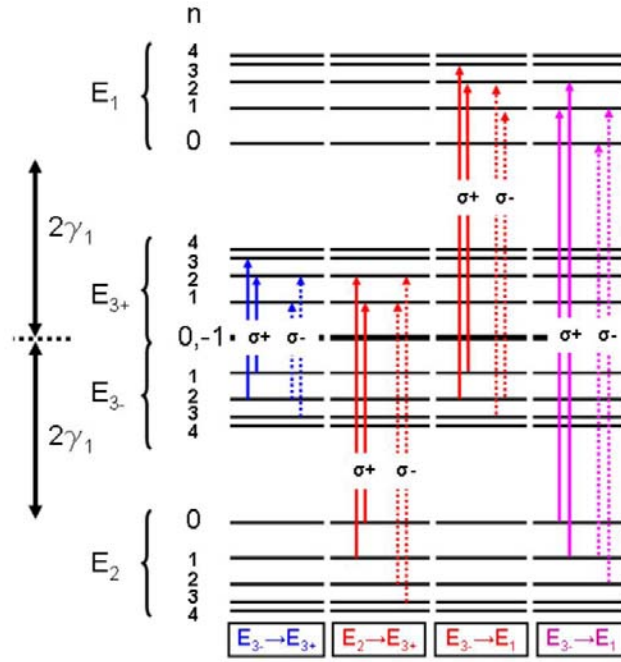


FIGURE 3.7 – Transitions entre les niveaux de Landau au point **K** : Les transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ sont en bleues, $E_{3-} \rightarrow E_1$ et $E_2 \rightarrow E_{3+}$ en rouges et $E_2 \rightarrow E_1$ en magenta.

Conclusion

Ce chapitre a montré les propriétés électroniques spécifiques au graphène et au graphite. Grâce à la délocalisation des électrons de la bande π et π^* sur différents atomes de carbone, on observe un comportement à la fois relativiste ($E \sim \sqrt{B}$) et quantique (niveaux de Landau) lorsque ces matériaux sont soumis à un champ magnétique même à température ambiante. L'étude de l'absorption optique en fonction du champ magnétique est un outil très utile pour mesurer les propriétés électroniques dans le graphène et le graphite. En mesurant la valeur du champ magnétique pour chaque transition, nous pouvons déduire le

comportement de l'énergie des niveaux de Landau en fonction du champ magnétique. De plus, en utilisant une lumière polarisée nous avons la possibilité de mettre en évidence la présence d'une asymétrie électrons-trous. Dans les prochains chapitres, nous montrerons les résultats de spectroscopie optique mesurant les transitions interbandes dans le graphite et le graphène sous champ magnétique très intense.

Origine de l'asymétrie électron-trou dans le graphite

De nombreuses observations dans le graphène, le graphène bicouche et le graphite [Li 2006, Deacon 2007, Henriksen 2008, Zhang 2008, Kuzmenko 2009, Chuang 2009, Tung 2011] ont montré une asymétrie électron-trou. L'observation d'une asymétrie, au point **K** du graphite, peut être reliée aux paramètres (notamment γ_4 et γ_5) du modèle **SWM**. Au contraire, au point **H** du graphite, il est généralement accepté que cette asymétrie n'est pas prédite car les paramètres γ_4 et γ_5 n'interviennent pas [Nakao 1976]. Dans le graphène bicouche, le paramètre γ_4 est également présent et est en partie à l'origine de cette asymétrie. Dans le graphène, l'asymétrie a été ajoutée empiriquement en utilisant des vitesses de Fermi différentes v_F pour les électrons et les trous [Chuang 2009].

Dans ce chapitre, nous allons réexaminer l'origine de l'asymétrie électron-trou dans le modèle **SWM**. Nous montrerons que même sans l'effet des paramètres γ_4 et γ_5 , l'asymétrie est toujours observée. Cet effet provient du terme de l'énergie cinétique d'un électron libre qui est souvent négligé. L'étude de l'origine de l'asymétrie dans le graphite permet d'élucider à la fois cette origine dans le graphène bicouche mais aussi dans le graphène monocouche. Dans la première partie, grâce aux mesures de spectroscopie effectuées jusqu'à 60 T avec le générateur 14 MJ, nous montrerons l'observation d'un clivage pour presque tous les types de transitions mesurées, aux points **K** et **H** du graphite. Cette observation sera reliée à l'asymétrie électron-trou grâce aux prédictions du modèle **SWM** incluant le terme de l'énergie cinétique d'un électron libre. Ensuite, une mesure de spectroscopie monochromatique (229 meV et 1.03 eV) à température ambiante effectuée avec le générateur Mégagauss jusqu'à 160 T sera décrite. Dans cette gamme d'énergie, nous avons mesuré la transition fondamentale ($0 \rightarrow 1$ et $1 \rightarrow 0$) au point **K**. Cette transition mettant en jeu le niveau $n = 0$ est particulière car il n'y a à priori pas d'asymétrie électron-trou et l'observation de cette transition dépend de la valeur de l'énergie de Fermi.

4.1 Spectroscopie visible et proche-infrarouge : Clivage des transitions

Dans la première partie de cette section, je vais décrire les résultats obtenus précédemment pour mettre en avant les corrections apportées par le modèle SWM incluant le terme de l'énergie cinétique d'un électron libre.

4.1.1 Graphite en flocons : Modèle EBM

L'expérience a été effectuée au LNCMI sur un échantillon de graphite naturel [Ubrig 2011]. La technique expérimentale est la même que décrite dans le chapitre 2. La figure 4.1 montre des spectres caractéristiques de magnéto-transmission différentielle résolus en énergie (0.75-1.15 eV) pour différents champs magnétiques entre 48 T et 58 T à basse température (4.2 K). Chaque pic d'absorption correspond à une transition. De plus, on observe clairement un clivage 'inattendu' des transitions interbandes au point **H** notées D et E.

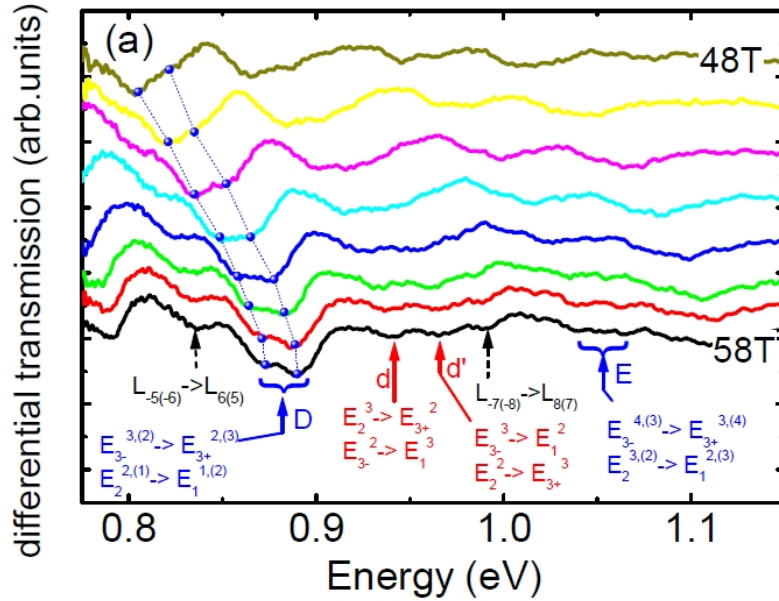


FIGURE 4.1 – Spectre énergétique de la magnéto-transmission différentielle du graphite naturel dans la gamme 48 à 58 T à $T \simeq 4.2$ K [Ubrig 2011].

L'énergie des absorptions en fonction du champ magnétique (20-60 T) est illustrée sur la figure 4.2. Les lignes correspondent aux transitions interbandes calculées avec le modèle du bicouche effectif (EBM). Les paramètres utilisés sont $\gamma_0 = 3.15$ eV et $\gamma_1 = 0.375$

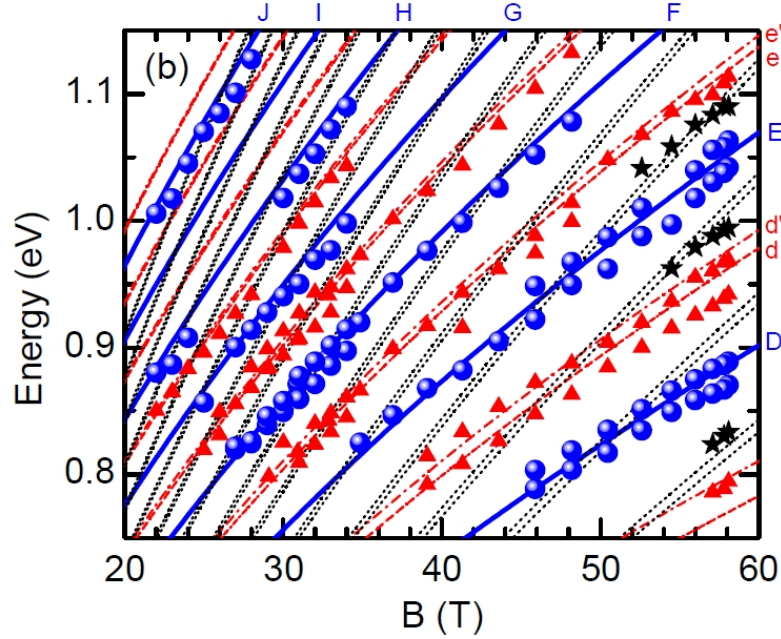


FIGURE 4.2 – Dépendance de l'énergie des absorptions observées en fonction du champ magnétique du graphite naturel. Les transitions au point **H** sont modélisées en bleu ($\Delta n = \pm 1$) et en rouge ($\Delta n = 0, \pm 2$) et les transitions au point **K** en noir en utilisant le modèle **EBM** [Ubrig 2011].

eV. Les transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ au point **K**, notées $L_{n,n+1} \rightarrow L_{n+1,n}$ sur la figure 4.1, sont illustrées en noir. Les transitions au point **H** avec un changement d'indice (règle de sélection apparente) $\Delta n = \pm 1$, notées D et E sont illustrées en bleu sur la figure 4.1. Les transitions avec un changement d'indice $\Delta n = 0$ et ± 2 , notées d, e et d', e' respectivement, sont illustrées en rouge.

L'utilisation du modèle du bicouche effectif (**EBM**) a permis d'attribuer les différents pics d'absorption aux transitions interbandes. Néanmoins, la présence d'un clivage des transitions ($\Delta n = \pm 1$) au point **H** ne peut être modélisé. Même avec le modèle **SWM**, les paramètres γ_3 , γ_4 et γ_5 ne jouent aucun rôle au point **H** où $\Gamma = 2 \cos\left(\frac{c_0 k_z}{2}\right) = 0$.

4.1.2 Graphite cristallin : modèle SWM avec terme de l'énergie cinétique

L'observation d'un clivage au point **H** nous a conduit à réexaminer l'Hamiltonien SWM. Nakao [Nakao 1976], par souci de clarté, a omis l'énergie cinétique d'un électron libre. Au point **H**, l'hamiltonien SWM en prenant en compte le terme de l'énergie cinétique d'un électron libre peut être diagonalisé facilement. Les valeurs propres se calculent analytique-

ment, telles que :

$$E_{3\pm}^n = \frac{1}{2}\Delta \pm \frac{1}{2}\sqrt{\left(\Delta + \frac{\hbar^2 s}{2m_0}\right)^2 + 3ns\gamma_0^2 a_0^2} + \frac{n\hbar^2 s}{2m_0} \pm \frac{g\mu_B B}{2} \quad (4.1a)$$

$$E_{1,2}^n = \frac{1}{2}\Delta \pm \frac{1}{2}\sqrt{\left(\Delta - \frac{\hbar^2 s}{2m_0}\right)^2 + 3(n+1)s\gamma_0^2 a_0^2} + \frac{(n+1)\hbar^2 s}{2m_0} \pm \frac{g\mu_B B}{2} \quad (4.1b)$$

où n est le nombre quantique, m_0 la masses d'un électron libre, $s = \frac{2eB}{\hbar}$, g le facteur de Landé et μ_B le magnéton de Bohr.

Tout d'abord, il est important de noter que le terme $\frac{\hbar^2 s}{2m_0} \ll s\gamma_0^2 a_0^2$ peut être négligé. On conserve donc la dégénérescence des niveaux $E_{3-}^{n+1} = E_2^n$ et $E_{3+}^{n+1} = E_1^n$. Le terme Zeeman peut être omis car seules les transitions interbandes entre même état de spin sont permises.

Le terme de l'énergie cinétique d'un électron libre induit un décalage des niveaux de Landau proportionnel au nombre quantique n pour les bandes $E_{3-,3+}$ et proportionnel à $n+1$ pour les bandes $E_{1,2}$. Ce terme, toujours positif, implique une asymétrie entre les bandes $E_{2,3-}$ ($E < 0$) et les bandes $E_{1,3+}$ ($E > 0$). Plus particulièrement, l'amplitude de cette asymétrie est proportionnelle à $\delta E \propto 2\frac{\hbar^2 s}{2m_0} = 0.23 \text{ meV.T}^{-1}$ et $\delta E \propto 4\frac{\hbar^2 s}{2m_0} = 0.46 \text{ meV.T}^{-1}$ pour les transitions $\Delta n = \pm 1$ et $\Delta n = \pm 2$ respectivement. Les transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ avec changement d'indice $\Delta n = 0$ ne sont pas affectées (voir figure 3.6 dans le chapitre précédent).

Au point **K**, une asymétrie électron trou est également induite pour toutes les transitions interbandes. Son effet s'ajoute à l'asymétrie principalement causée par les termes γ_4 et γ_5 . Or, aucuns clivages des transitions liées au point **K** n'ont été observés dans les expériences précédentes [Ubrig 2011].

Nous avons décidé de refaire l'expérience décrite précédemment pour vérifier les prédictions du modèle **SWM** incluant le terme de l'énergie cinétique d'un électron libre. Nous avons augmenté la gamme d'énergie à 0.6-1.2 eV en utilisant un détecteur InGaAs étendu, augmenté le champ à 58.8 T, diminué la température à 1.8 K et augmenté la taille des cristaux en utilisant du graphite naturel cristallin.

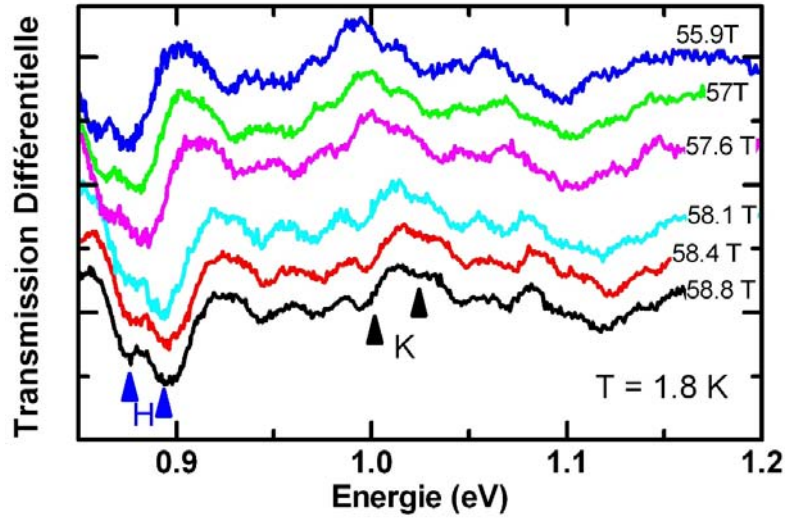


FIGURE 4.3 – Spectre énergétique de la magnéto-transmission différentielle du graphite naturel dans la gamme 55.8 à 55.9 T à $T \simeq 1.8$ K.

Les spectres caractéristiques de magnéto-transmission différentielle sur le graphite cristallin sont illustrés sur la figure 4.3 pour des champs magnétiques de 55.9 T à 58.8 T à basse température (1.8 K). On retrouve les pics d'absorption correspondant au résultat précédent. L'amplitude de ces absorptions est plus importante, ce qui a permis de mettre en évidence le clivage des transitions, au point **K** et au point **H**.

La figure 4.4 (points bleus) représente l'énergie des pics d'absorptions (0.6 eV à 1.1 eV) en fonction du champ magnétique (35 T à 60 T). Les énergies des transitions au point **K** et **H** sont calculées en utilisant le modèle **SWM** incluant le terme de l'énergie cinétique d'un électron libre avec les paramètres du tableau 4.1. Les transitions interbandes, au point **H**, $\Delta n = 0$, $\Delta n = \pm 1$ et $\Delta n = \pm 2$ sont illustrées en vert, en bleu et en rouge respectivement. Les transitions interbandes, au point **K** sont illustrées en noir.

Dans les nouvelles données, nous avons pu suivre le clivage de la plupart des transitions, au point **H** et **K** sur une large gamme énergétique. Plus particulièrement, la différence d'énergie du clivage pour les transitions $\Delta n = \pm 2$ en rouge, est deux fois plus importante que pour les transitions $\Delta n = \pm 1$ en bleu et les transitions $\Delta n = 0$ en vert ne sont pas clivées. Ces observations sont en très bon accord avec les prédictions du modèle **SWM**.

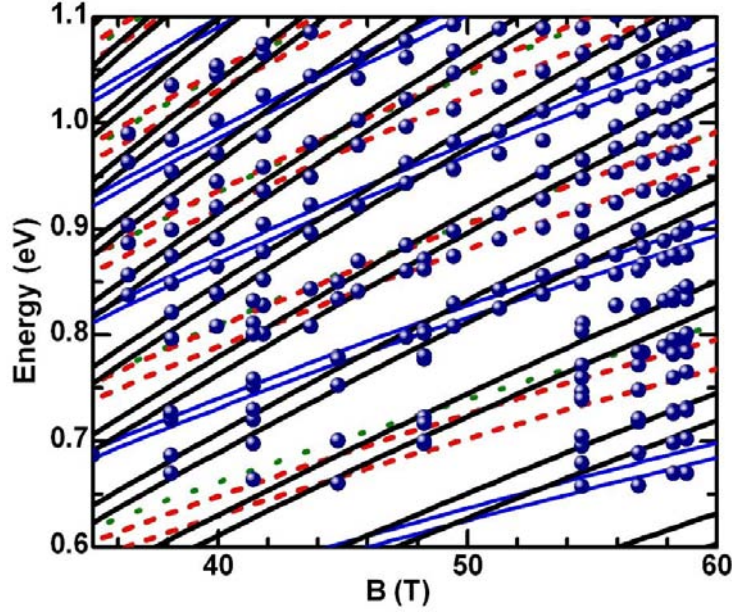


FIGURE 4.4 – Dépendance de l'énergie des absorptions observées (points bleus) en fonction du champ magnétique de l'échantillon de graphite cristalin. Modèle **SWM** calculant les transitions au point **H**, ($\Delta n = \pm 1$ en trait plein bleu, $\Delta n = \pm 2$ en pointillé rouge, $\Delta n = 0$ en pointillé vert) et au point **K** ($\Delta n = 1$ en noir). Les paramètres utilisés sont résumés dans le tableau 4.1.

Paramètre	Valeur	Paramètre	Valeur	Paramètre	Valeur
γ_0	3.15 eV	γ_1	370 meV	γ_2	-24.3 meV
γ_3	310 meV	γ_4	70 meV	γ_5	50 meV
Δ	-2 meV				

TABLE 4.1 – Valeur des paramètres SWM utilisés.

Modification du modèle du bicouche effectif

On peut également introduire de façon phénoménologique l'énergie cinétique d'un électron libre dans l'expression du modèle du bicouche effectif [Koshino 2008] au point **K** où $\lambda_m = 2$.

$$\varepsilon_{n,\mu,s} = \frac{s}{\sqrt{2}} \sqrt{(\lambda\gamma_1)^2 + (2n+1)\Delta_B + \mu} \sqrt{(\lambda\gamma_1)^4 + 2(2n+1)(\lambda\gamma_1)^2\Delta_B + \Delta_B^4} + \frac{(n + \frac{1}{2})\hbar^2 s}{2m_0} \quad (4.2)$$

pour $n \geq 1$,

Les deux niveaux de Landau spéciaux ($n=0,-1$) peuvent également être modifié empirique-

ment, tels que :

$$\varepsilon_n = \frac{(n + \frac{3}{2})\hbar^2 s}{2m_0} - 16(n + 1)\frac{\hbar^2 s}{2m_0} \quad (4.3)$$

Nous avons vérifié que ces prédictions sont en accord avec le modèle **SWM** avec $\gamma_2 \dots \gamma_5 = 0$ et $\Delta = 0$.

4.2 Spectroscopie monochromatique : Asymétrie au point K

Pour étudier les transitions fondamentales $0 \rightarrow 1$ et $1 \rightarrow 0$ et l'asymétrie au point **K**, nous avons effectué des mesures de spectroscopie monochromatique avec le générateur Mégagauss du LNCMI. Les mesures ont été faites sur du graphite cristallin à température ambiante (300 K) dans l'infrarouge ($5.395 \mu\text{m}$ et $1.064 \mu\text{m}$). A cette température, on ne voit pas directement le clivage et il est donc nécessaire d'utiliser une lumière polarisée circulairement (σ^+ ou σ^-) pour mesurer l'asymétrie électron-trou.

La figure 4.5 montre les résultats de magnéto-transmission obtenus à $5.395 \mu\text{m}$. Seul le si-

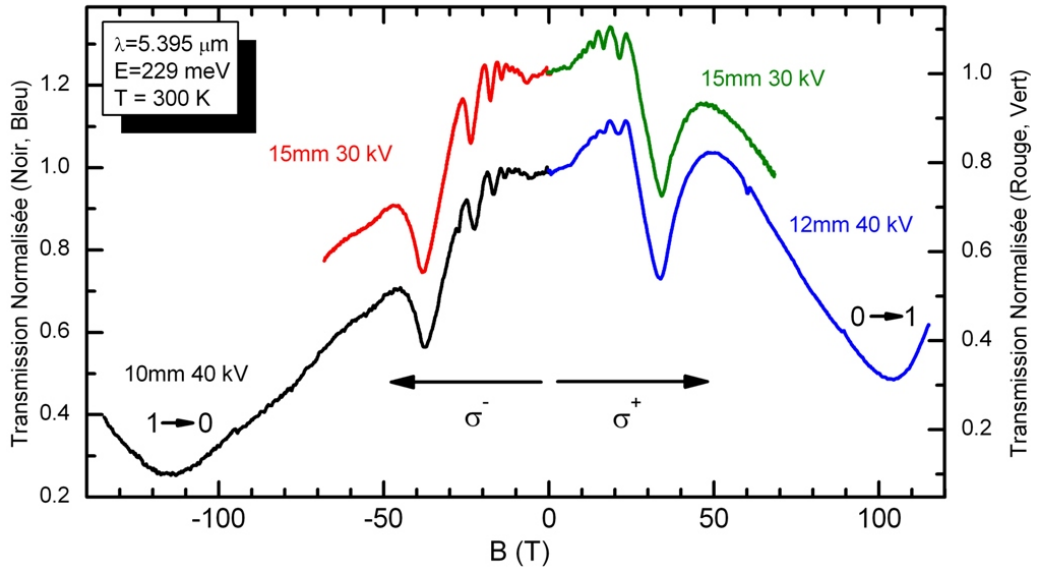


FIGURE 4.5 – Signal de magnéto-transmission moyenné pendant la première demi-période avec un laser CO à 229 meV sur du graphite cristallin à température ambiante. La partie $B < 0$ correspond à la polarisation σ^- et la partie $B > 0$ à la polarisation σ^+ . Différentes bobines (10 mm, 12 mm, 15 mm) ont été utilisées.

gnal moyenné pendant la première demi-période (montée/descente du champ magnétique)

de la transmission est indiquée pour chaque tir. Le champ magnétique $B < 0$ ($B > 0$) correspond à une polarisation circulaire σ^- (σ^+). Les tirs utilisant un diamètre de bobines de 10 mm (en noir) et 12 mm (en bleu) ont permis de mesurer la transition fondamentale $1 \rightarrow 0$ à 114 T et $0 \rightarrow 1$ à 103.5 T respectivement. Les tirs effectués avec une bobine de 15 mm de diamètre (en rouge et en vert) ont permis de mesurer plus précisément les absorptions à bas champ. Le champ magnétique alternatif (changement de la symétrie) du générateur Mégagauss pendant la deuxième demi-période, nous assure une bonne précision sur la différence en champ magnétique entre les différents pics d'absorption des deux polarisations.

Les absorptions observées dans cette gamme d'énergie sont principalement dues aux transitions au point **K**. En effet, à température ambiante le rapport des conductivités $\frac{\sigma_{//}}{\sigma_{\perp}}$, avec $\sigma_{//}$ la conductivité dans le plan ($\sigma_{//} \equiv$ point **K**) et σ_{\perp} la conductivité inter-plan ($\sigma_{\perp} \equiv$ point **H**), est de l'ordre de 100 [Wallace 1947]. Or, l'absorption étant proportionnelle à la conductivité, la contribution optique sera dominé par les transitions au point **K**.

La figure 4.6 montre les absorptions obtenues à 229 meV (5.395 μm) et 1.165 eV (1.064 μm) en fonction du champ magnétique à température ambiante (300 K). Les résultats obtenus avec la polarisation circulaire σ^+ (σ^-) sont indiquées en rouge (en bleu). Pour modéliser l'énergie des transitions, nous avons utilisé le modèle **SWM** incluant le terme de l'énergie cinétique d'un électron libre avec les mêmes paramètres (tableau 4.1) que le précédent résultat. La dépendance de l'énergie en fonction du champ magnétique des transitions aux points **K** correspondant au changement d'indice $\Delta n = +1$ et $\Delta n = -1$ est modélisé en pointillé rouge et en trait plein bleu respectivement.

L'amplitude de l'asymétrie des transitions observées est en bon accord avec le modèle utilisé. Cependant, à 229 meV, il existe une ambiguïté sur l'asymétrie de la transition $1,2 \rightarrow 2,1$ au point **K** car elle a une énergie très proche de la transition fondamentale $0 \rightarrow 1$ et $1 \rightarrow 0$ au point **H**. Cette transition est illustrée en vert et kaki.

La présence d'une asymétrie pour les transitions fondamentales au point **K** $0(1) \rightarrow 1(0)$ à 103.5 T et 114 T ne s'explique pas par l'énergie cinétique d'un électron libre car le niveau $n = 0$ a un terme d'asymétrie $(n + \frac{3}{2}) \frac{\hbar^2 s}{2m_0}$ avec une valeur identique au terme $(n + \frac{1}{2}) \frac{\hbar^2 s}{2m_0}$ pour le niveau $n = 1$. Nous sommes donc obligés de chercher ailleurs l'origine de l'asymétrie observée.

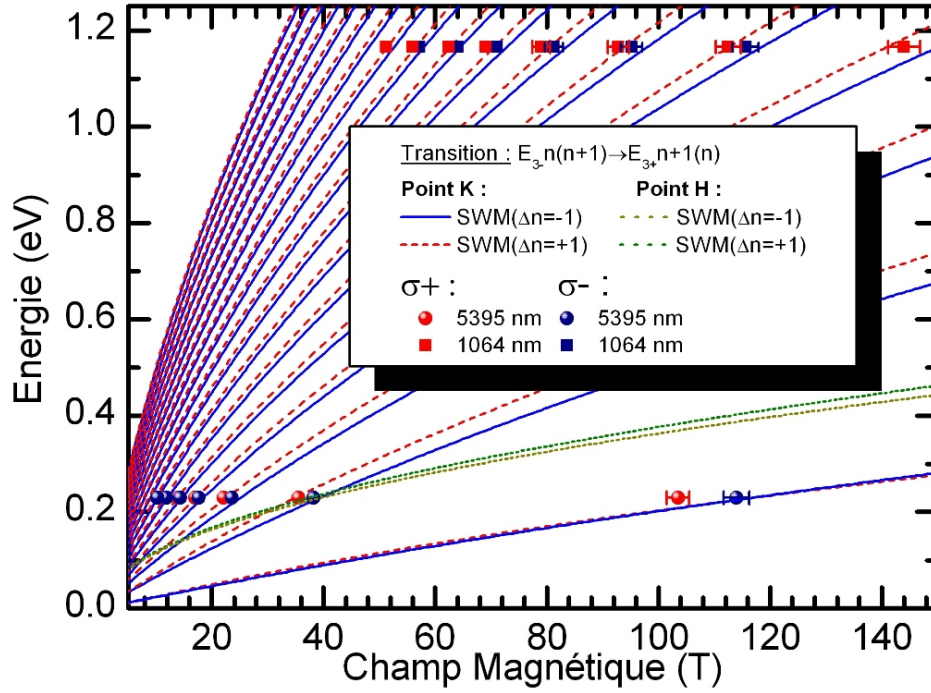


FIGURE 4.6 – Energie des absorptions obtenues à 229 meV (5395 nm) et 1.165 eV (1064 nm) en fonction du champ magnétique. Les transitions interbandes au point **K** $\Delta n = 1$ et $\Delta n = -1$ sont illustrées en bleu et en rouge respectivement. La transition fondamentale au point **H** est illustrée en vert et kaki à 5395 nm et 1064 nm. Les paramètres **SWM** utilisés sont résumés dans le tableau 4.1 en incluant le terme de l'énergie cinétique d'un électron libre.

4.3 Transitions $0 \rightarrow 1$ et $-1 \rightarrow 0$ au point K : Niveau de Fermi et clivage de spin

A champ magnétique nul, la bande E_3 (2 fois dégénérée) est remplie d'électrons (trous) autour du point **K** (**H**). Lorsque l'on applique un champ magnétique perpendiculaire aux plans de graphite, on lève la dégénérescence qui forme deux bandes (E_{3-} et E_{3+}). Ces bandes se trouvent au dessus ($E_{3+} > E_F$) et en dessous ($E_{3-} < E_F$) du niveau de Fermi pour un champ magnétique supérieur à 7 T (appelé limite quantique). On obtient deux niveaux particuliers $E_3^{n=0}$ et $E_3^{n=-1}$ proches du niveau de Fermi, illustrés sur la figure 4.7 a). Ces deux niveaux sont composés à la fois de trous et d'électrons selon k_z même à très fort champ ($B > 200$ T) [Y Shimamoto 1998].

Les différentes transitions impliquant ces niveaux E_3 particuliers au point **K** sont :

$$E_3^{n=-1} \rightarrow E_3^{n=0} \text{ et } E_3^{n=0} \rightarrow E_3^{n=-1}$$

Ces transitions ne peuvent être observées dans notre expérience car leur énergie est faible (< 50 meV). Elles sont à l'origine d'un effet d'onde de densité de charge sur la magnéto-résistance observée à basse température ($T < 10$ K) [Yaguchi 1998].

$$E_{3-}^{n=1} \rightarrow E_3^{n=-1} \text{ et } E_3^{n=-1} \rightarrow E_{3+}^{n=1}$$

Le niveau $n = -1$ étant très majoritairement peuplé d'électrons ($E_3^{n=-1} < E_F$), seule la transition $E_3^{n=-1} \rightarrow E_{3+}^{n=1}$ est possible. Cette transition avec $\Delta n = 2$ est rendue possible en prenant en compte l'effet de la corrugation (γ_3) qui induit une règle de sélection spécifique ($\Delta n = 3m \pm 1$, $m \in \mathbb{Z}$) pour des basses énergies [Li 2006, Falkovsky 2011, Orlita 2012]. Elle a été observée à 43 T pour une énergie de 116.9 meV mais non observée pour des énergies supérieures [Y Shimamoto 1998].

$$E_{3-}^{n=1} \rightarrow E_3^{n=0} (1 \rightarrow 0) \text{ et } E_3^{n=0} \rightarrow E_{3+}^{n=1} (0 \rightarrow 1)$$

Pour des champs magnétiques supérieurs à 52-54 T [Yaguchi 1998], seules les transitions $E_{3-, \uparrow}^{n=1} \rightarrow E_{3, \uparrow}^{n=0}$ et $E_{3, \downarrow}^{n=0} \rightarrow E_{3+, \downarrow}^{n=1}$ sont possibles à basse température à cause du passage du niveau de Fermi entre le niveau $n = 0$ spin \uparrow et spin bas \downarrow [Takada 1998]. Nos expériences étant réalisées à température ambiante (300 K), les niveaux $E_{3, \uparrow}^{n=0}$ et $E_{3, \downarrow}^{n=0}$ sont peuplés de façon à peu près égale. Même à 100 T, le rapport de population est $\sim e^{-\frac{\Delta E}{k_B T}}$ est de 0.8. Nous avons donc la possibilité de voir les quatres transitions, illustrées sur la figure 4.7 c).

Nous allons maintenant nous intéresser aux transitions observées à 229 meV aux alentours de 100 T sur la figure 4.6. Pour analyser ces transitions et déduire le comportement particulier du niveau $E_3^{n=0}$, nous allons considérer que les paramètres **SWM** modélisent parfaitement les niveaux $n = 1$ comme le suggèrent les résultats des figures 4.4 et 4.6. Pour obtenir la valeur mesurée de l'énergie $E_3^{n=0}$, on soustrait à l'énergie du laser E_{laser} , les valeurs des niveaux $E_{3-}^{n=1}$ et $E_{3+}^{n=1}$ calculées avec le modèle **SWM**. On obtient deux équations en fonction de la polarisation :

Pour la polarisation $\sigma+$:

$$E_{laser} = \Delta E_{\sigma+} = E_{3+}^{n=1} - E_3^{n=0} \quad (4.4)$$

$$\Rightarrow E_3^{n=0} = E_{3+}^{n=1} - \Delta E_{\sigma+} \quad (4.5)$$

Pour la polarisation $\sigma-$:

$$E_{laser} = \Delta E_{\sigma-} = E_3^{n=0} - E_{3-}^{n=1} \quad (4.6)$$

$$\Rightarrow E_3^{n=0} = \Delta E_{\sigma-} + E_{3-}^{n=1} \quad (4.7)$$

4.3. Transitions $0 \rightarrow 1$ et $-1 \rightarrow 0$ au point K : Niveau de Fermi et clivage de spin 71

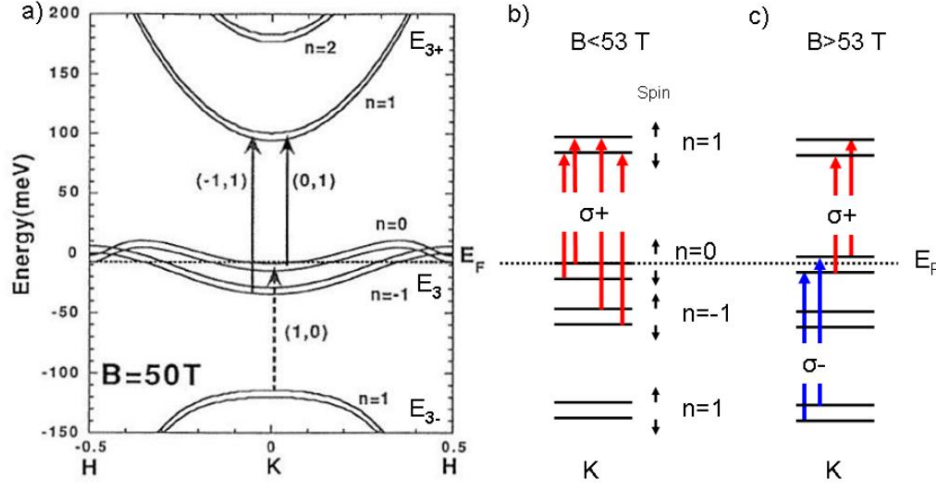


FIGURE 4.7 – a) Energie des niveaux de Landau ($n=-1,0,1$) de la bande E_{3-} et E_{3+} calculée avec le modèle **SWM** pour un champ magnétique de 50 T [Y Shimamoto 1998]. Le clivage de spin est pris en compte. Les flèches en trait plein et en pointillés représentent les transitions $\Delta n=1(\sigma+)$ et $\Delta n=-1(\sigma-)$ respectivement. Transitions possibles pour un champ magnétique b) inférieur à 53 T et c) supérieur à 53 T.

La figure 4.8 montre l'énergie des niveaux $n=-1,0$ calculé avec le modèle **SWM** (même paramètres que précédemment) en négligeant le spin. Les résultats obtenus à température ambiante à une énergie de 229.4 meV sur l'échantillon de graphite cristallin sont indiqués par des ronds rouges (σ^-) et noirs (σ^+). Les résultats obtenus à différentes températures (28 K, 26 K et 300 K) et à différentes énergies (116 meV, 224 meV et 334 meV) sur du Kish graphite par [Y Shimamoto 1998] sont indiqués par des carrés rouges (σ^-) et noirs (σ^+).

Les valeurs obtenues aux alentours de 110 T sont en bon accord avec les valeurs calculées avec le modèle **SWM**. Néanmoins, nous observons clairement dans les données brutes (figure 4.5), une asymétrie d'environ 10 T entre les transitions $E_{3\uparrow}^{n=1} \rightarrow E_{3\uparrow}^{n=0}$ et $E_{3\downarrow}^{n=0} \rightarrow E_{3\downarrow}^{n=1}$ autour de 110 T. Cette asymétrie ne peut en aucun cas être attribué directement à l'effet Zeeman car les règles de sélection dans le graphite fait en sorte que le spin est obligatoirement conservé (voir figure 4.7c). En effet le calcul de l'énergie du niveau $E_3^{n=0}$ montré dans la figure 4.8 est trop simpliste car il néglige les interactions électron-électron [Yaguchi 1998]. En même temps l'énergie du niveau $E_3^{n=0} (\sigma^-)$ reste très proche des prédictions du modèle **SWM** mais la différence d'énergie entre les deux polarisations est énorme (~ 50 meV). Cette différence est équivalente aux données obtenues par [Y Shimamoto 1998] malgré des températures très largement différentes (26 K et 300 K). Ceci tend à confirmer [Yaguchi 1998] qu'il existe de fortes modifications à

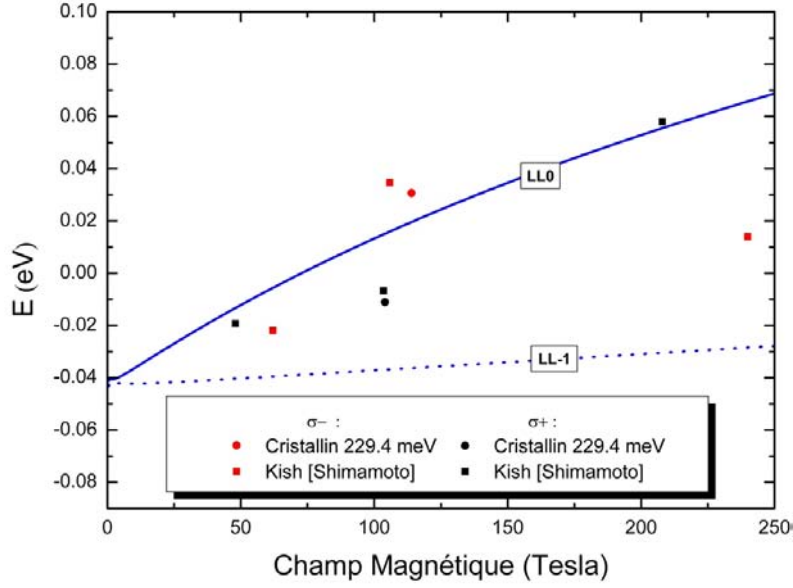


FIGURE 4.8 – Energie du niveau $n = 0$ au point **K** du graphite, déduite à partir des pics d'absorptions observés et de la valeur des niveaux $E_{3-}^{n=1}$ et $E_{3+}^{n=1}$ calculé avec le modèle **SWM** sans le spin. Les carrés correspondent aux absorptions observées par Shimamoto [Y Shimamoto 1998]. Les ronds correspondent aux absorptions mesurées dans cette thèse. La couleur rouge symbolise la polarisation σ^- et la couleur noire symbolise la polarisation σ^+ . Les niveaux $n = -1$ et $n = 0$ sont modélisés avec le modèle **SWM** sans le spin [Yaguchi 1998].

apporter dans la modélisation du niveau $E_3^{n=0}$ (interactions électron-électron). Des expériences supplémentaires à plus basse température seront nécessaires pour quantifier cette hypothèse.

4.4 Conclusion

Les résultats expérimentaux obtenus par spectroscopie résolue en énergie et par spectroscopie monochromatique sont en très bon accord avec le modèle **SWM** prenant en compte le terme de l'énergie cinétique d'un électron libre. La valeur de ce terme est de l'ordre de $0.23 \text{ meV} \cdot \text{T}^{-1}$ et induit une asymétrie électron-trou sur tout le chemin **H-K-H**.

Graphite Au point **H**, on observe une asymétrie électron trou au point **H**. Nous avons trouvé l'origine de cette asymétrie qui avait déjà été observée dans le graphite. Elle prend différentes valeurs en fonction des transitions étudiées. Elle est égale à 0, $\delta E \propto 2 \frac{\hbar^2 s}{2m_0}$, $\delta E \propto 4 \frac{\hbar^2 s}{2m_0}$ pour les transitions avec la règle de sélection apparente $\Delta n = 0, \Delta n = \pm 1, \Delta n = \pm 2$ respectivement.

Au point **K**, on observe une augmentation de l'asymétrie électron-trou au point **K** en addition avec l'asymétrie apportée par les paramètres du modèle **SWM**. Tout ajustement des mesures avec le modèle **SWM** à fort champ magnétique ne prenant pas en compte l'énergie cinétique d'un électron libre donnera une surestimation de ces paramètres. Par exemple, la valeur de l'asymétrie causées par le terme de l'énergie cinétique est de 13.8 meV à 60 Tesla et l'asymétrie prédit et observée par le modèle **SWM** est d'environ 24 meV. Les paramètres les plus prépondérants γ_4 et γ_5 contribuent à environ 40 % de l'asymétrie totale.

Graphène Le spectre énergétique des niveaux de Landau du graphène, au voisinage des points de Dirac, peut être déduit de l'Hamiltonien du modèle **SWM** en définissant les paramètres $\gamma_1 \dots \gamma_5, \Delta = 0$. On retrouve l'équation 4.1 sans le terme Δ . On en déduit que le terme de l'énergie cinétique d'un électron libre peut être en partie à l'origine de l'asymétrie observée. Ceci n'est pas étonnant car l'énergie cinétique d'un électron libre entre dans l'Hamiltonien du graphite et du graphène via l'Hamiltonien pour un atome de carbone isolé.

Etude de la dispersion relativiste dans le graphite sous champ magnétique Megagauss

Ce chapitre a pour but d'étudier la dispersion énergétique des quatres bandes E_1 , E_2 , E_{3-} et E_{3+} du graphite au point **K**. De nombreuses mesures ¹ ont été réalisées récemment pour étudier le comportement des électrons au voisinage des points **K** et **H**. Il est maintenant prouvé que le comportement des électrons (trous) est ambivalent. Ces particules peuvent être considérées comme des fermions de Dirac (relativistes) sans masse au point **H** (semblable au graphène) et avec masse au point **K** (semblable au bicouche). Cependant, il existe encore des questions sur le comportement de ces particules loin du niveau de Fermi. Jusqu'à quelle énergie sont-elles encore relativistes ? Quel est le comportement des bandes E_1, E_2 ?

Les études des transitions inter-bandes dans le graphite à des énergies supérieures à 500 meV sont rares. Seules deux mesures à basse température (Hélium liquide) ont été effectuées, la première [Orlita 2009] jusqu'à 600 meV et 34 T en champ magnétique statique et la deuxième [Ubrig 2011] jusqu'à 1100 meV et 58 T en champ magnétique pulsé.

Grâce à l'utilisation du générateur Mégagauss produisant un champ magnétique de 160 T, nous avons pu mettre en évidence l'observation de nombreuses transitions interbandes au point **K** à 300 K. A température ambiante, la conductivité au point **K** est environ 100 fois plus importantes qu'au point **H** [Wallace 1947]. Dans la gamme étudiée, le signal est donc largement dominé par les transitions au point **K**. Nous avons mesuré pour la première fois, les transitions entre les niveaux de Landau des bandes E_1 et E_2 .

La première partie présentera les résultats de magnéto-transmission obtenus sur une large gamme d'énergie (1 eV à 2 eV) jusqu'à 160 T à température ambiante. Le principe de la spectroscopie monochromatique est décrite dans le chapitre 2. Une analyse fréquentielle, en fonction de l'inverse du champ, permettra de mettre en évidence l'observation de trois groupes de fréquences observables en fonction de l'énergie. Ces trois fréquences seront associées aux différentes transitions interbandes possibles au point **K** : (i) $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$, (ii)

1. [Sadowski 2006, Li 2007, Chuang 2009, Ubrig 2011, Grüneis 2008b, Grüneis 2008a, Orlita 2009, Tung 2011, Levallois 2012]

$E_2 \rightarrow E_{3+}$ et $E_{3-} \rightarrow E_1$ et, (iii) $E_2 \rightarrow E_1$.

Ensuite, dans la deuxième partie, on utilisera la périodicité des transitions interbandes pour mesurer l'impulsion de la pseudo-particule (paire électron-trou). Nous démontrons que pour les transitions symétriques ($E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ et $E_2 \rightarrow E_1$), cela revient à mesurer la relation de dispersion avec une formule relativiste $E = \sqrt{m^2v^4 + p^2v^2}$ avec $v_F = 1.03 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$ et une énergie au repos $mv^2 = \gamma_1 = 385 \text{ meV}$. Les transitions $E_2 \rightarrow E_{3+}$ et $E_{3-} \rightarrow E_1$ ont en revanche des valeurs différentes de la vitesse $v_F(E_2 \rightarrow E_{3+}) = 1.1 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$ et $v_F(E_{3-} \rightarrow E_1) = 0.945 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$.

La troisième partie modélisera l'énergie des trois types de transitions avec le modèle du bicouche effectif (**EBM**) et assignera chaque pic d'absorption à une transition entre deux niveaux de Landau d'indice n et n' .

Finalement, la quatrième partie montrera l'observation d'une augmentation drastique de la largeur des transitions entre les résultats obtenus avec le laser CO et la spectroscopie proche infrarouge et visible. Ce phénomène peut être relié à la relaxation ultra-rapide des électrons via un phonon optique.

5.1 Résultats de magnéto-transmission : Observation de trois types de transitions

Les mesures de magnéto-transmission obtenues à température ambiante pour différentes longueurs d'onde (633-1204 nm) sur un échantillon de graphite naturel cristallin sont illustrées sur la figure 5.1. Le signal pour chaque longueur d'onde correspond à la moyenne de la transmission normalisée de la montée et de la descente du champ magnétique (première demi-période). La lumière incidente n'est pas polarisée.

Tous les signaux montrent une série de pics d'absorption de grande amplitude pour des champs magnétiques supérieurs à 30-50 Tesla. Ces pics dominants seront associés, dans la prochaine section, aux transitions interbandes $E_{3+} \rightarrow E_{3-}$ au point **K**. De plus, on observe une composante à basse fréquence s'ajoutant aux pics d'absorption dominants, clairement visible sur la figure 5.1 pour les longueurs d'onde de 820 nm à 695 nm. Pour tenter d'extraire cette composante, nous avons effectué, dans une première approche, une analyse fréquentielle de la transmission en fonction de l'inverse du champ magnétique.

La figure 5.2 représente la transformée de Fourier de la dépendance en $(1/B)$ des signaux de la figure 5.1 pour les différentes valeurs de longueurs d'onde. On observe un pic dominant de fréquence F_1 indiqué par la flèche pointillée évoluant de ($\sim 400 \text{ T}$ à 1204 nm et $\sim 1000 \text{ T}$ à 695 nm). Deux autres pics d'amplitude plus faible de fréquences F_2 et F_3 , montrés par des flèches colorées, semblent être observables seulement au-dessus (au-dessous) d'une éner-

5.1. Résultats de magnéto-transmission : Observation de trois types de transitions 77

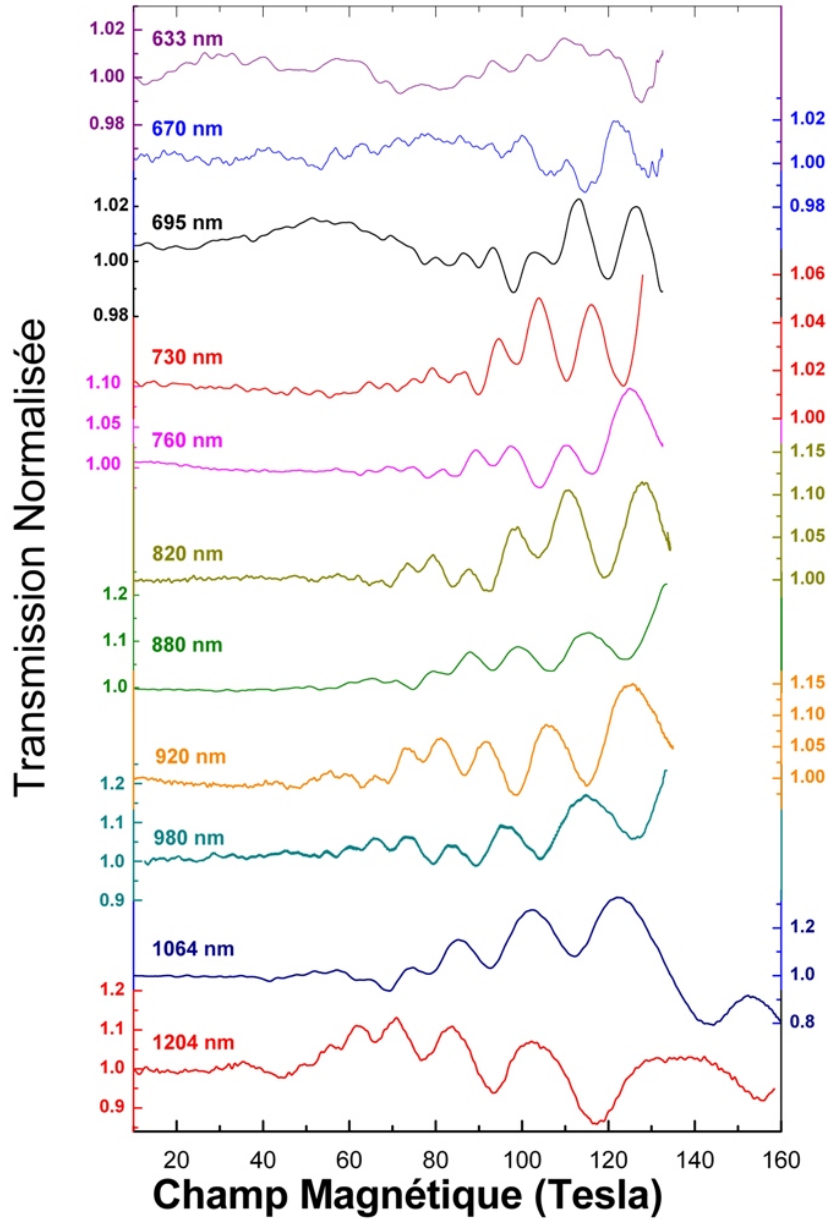


FIGURE 5.1 – Mesures de magnéto-transmission moyennées (montée/descente) pour des sources monochromatiques non-polarisées allant de 1204 nm à 633 nm a temperature ambiante sur un échantillon de graphite naturel cristallin.

gie (longueur d'onde) seuil non nulle, notamment la fréquence F_3 à partir de $E \geq 1.78$ eV ($\lambda \leq 695$ nm). Cette observation est en accord avec l'existence des bandes E_1 et E_2 qui possèdent au point **K** une énergie égale à $E_3 \pm 2\gamma_1$ respectivement à champ magnétique nul.

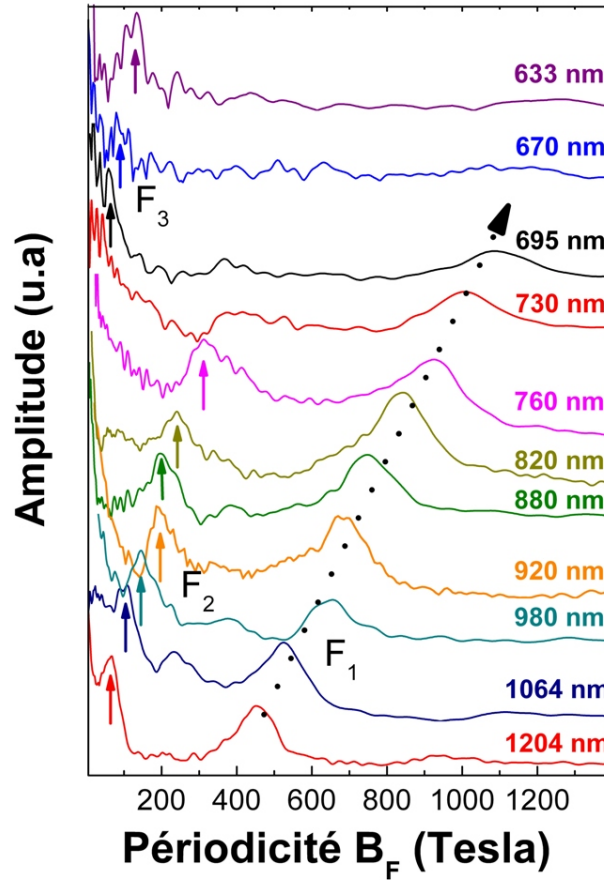


FIGURE 5.2 – Transformée de Fourier des signaux de magnéto-transmission de la figure 5.1 en fonction de $(1/B)$. La gamme énergétique s'étend de ~ 1 eV (1204 nm) à ~ 2 eV (633 nm). On observe trois pics de fréquence F_1 , F_2 , F_3 correspondant aux trois types de transitions inter-bandes au point **K** observées dans le graphite.

Ces transitions de faibles amplitudes impliquant les niveaux de Landau des bandes E_1 et E_2 au point **K** du graphite n'ont jamais été mesurées optiquement. Elles sont observables uniquement à fort champ magnétique lorsque les niveaux de Landau impliqués sont discernables et lorsque l'énergie mise en jeu est supérieure à $2\gamma_1$ pour les transitions $E_2 \rightarrow E_{3+}$ et $E_{3-} \rightarrow E_1$, et supérieure à $4\gamma_1$ pour les transitions $E_2 \rightarrow E_1$. Les champs Mégagauss du LNCMI ont permis d'observer pour la première fois ces transitions en champ magnétique. Dans le but de relier les fréquences observées avec les différents types de transition, il est nécessaire de trouver une relation décrivant la périodicité des transitions en fonction de l'inverse du champ magnétique. Cette analyse part du modèle **EBM** en considérant l'énergie des niveaux de Landau ε_n au point **K**.

5.1. Résultats de magnéto-transmission : Observation de trois types de transitions 79

L'énergie E des transitions interbandes $\Delta n = \pm 1$ s'écrit :

$$E = |\varepsilon_n| + |\varepsilon_{n-1}| \quad (5.1)$$

On peut dériver une expression approximative qui exprime le champ magnétique B_i auquel a lieu le pic d'absorption correspondant à l'énergie E de la transition inter-bandes entre le $(i - 1)^{\text{ème}}$ dans la bande de valence et le $i^{\text{ème}}$ niveau dans la bande de conduction pour les transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ (voir Annexe).

$$i\alpha B_i = \frac{E^2}{4} + \frac{\lambda_m \gamma_1 E}{2} \quad (5.2)$$

où, $\alpha = v_F^2 2e\hbar$ et $\lambda_m = 2$ au point **K**.

L'équation modélisant la fréquence des transitions impliquant les bandes E_1 et E_2 s'écrit :

$$i\alpha B_i = \frac{(E - \Omega)^2}{4} + \frac{\lambda_m \gamma_1 (E - \Omega)}{2} \quad (5.3)$$

où, $\Omega \simeq 2\gamma_1$ pour les transitions $E_2 \rightarrow E_{3+}$ et $E_{3-} \rightarrow E_1$ et, $\Omega = 4\gamma_1$ pour les transitions $E_2 \rightarrow E_1$.

A une énergie donnée, les pics d'absorption sont périodiques en $(1/B)$, de fréquence $F_B(E)$. Le champ magnétique B_i correspondant au pic d'absorption pour une transition de nombre harmonique i se déduit :

$$B_i(E) = \frac{F_B(E)}{i} \quad (5.4)$$

Les équations 5.2 et 5.3 sont équivalentes à la formule relativiste du graphène bicouche [McCann 2006] à champ nul :

$$v^2 p^2 = \varepsilon^2 + \gamma_1 \varepsilon \quad (5.5)$$

avec un paramètre $\gamma_1 \rightarrow \lambda_m \gamma_1$, $E = 2\varepsilon$ l'énergie des transitions, $p \rightarrow p_{trans}$ l'impulsion quantifiée des transitions et $v \rightarrow v_{trans}$ la vitesse de Fermi des transitions.

Ces expressions représentent l'impulsion quantifiée p_{trans} d'une pseudo-particule (paire électron-trou) possédant une énergie égale à deux fois l'énergie relativiste d'une particule (électrons ou trous) d'énergie au repos γ_1 et d'impulsion quantifiée p .

Les trois types de transitions possèdent donc une fréquence $F_B(E)$ propre évoluant en fonction de l'énergie incidente. Il est donc possible de séparer les différentes transitions en utilisant un filtre fréquentiel. Pour mesurer le champ magnétique des pics d'absorption impliquant les bandes E_1 et E_2 , nous avons appliqué un filtre de Fourier coupe-bande autour

de la fréquence dominante F_1 (~ 400 T à ~ 1000 T). La figure 5.3 représente le signal filtré (trait plein) pour chaque longueur d'onde de la figure 5.2. Le signal brut est indiqué en pointillé. Grâce à cette analyse, on peut déduire le champ magnétique des pics d'absorption correspondant aux fréquences secondaires (F_2 et F_3).

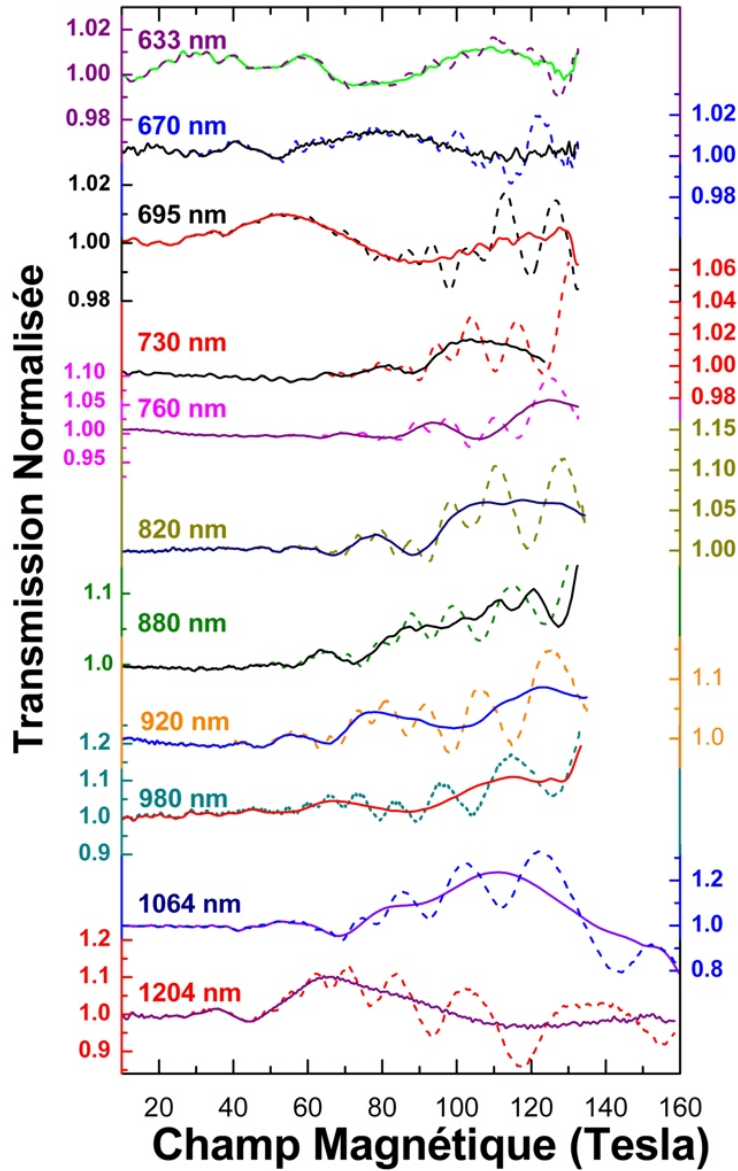


FIGURE 5.3 – Signal de magnéto-transmission moyenné (montée/descente) obtenu pour différentes longueurs d'onde. Les traits en pointillé correspondent aux données moyennées (montée/descente) et les traits épais sont obtenus avec un filtre coupe-bande autour de la fréquence F_1 .

5.2 Fréquence des transitions : Etude de la dispersion relativiste

L'analyse en $(1/B)$ de la position en champ magnétique de chaque pic d'absorption permet d'obtenir une dépendance *précise* de chaque type de transitions observées F_B en fonction de l'énergie. Cette mesure minimise l'erreur sur la valeur en champ magnétique des pics d'absorption car elle prend en compte la périodicité entre toutes les transitions pour une énergie donnée. De plus, il est possible d'obtenir la dispersion énergétique de chaque type de transitions en fonction de son impulsion $F_B \propto p_{trans}^2$.

En plaçant l'inverse du champ magnétique des absorptions trouvées en fonction du nombre harmonique i , correspondant aux équations 5.2-5.3, puis en effectuant une régression linéaire nous pouvons améliorer la définition de la fréquence en champ magnétique $F_B(E)$ pour chaque énergie. Les figures 5.4-5.5 montrent les régressions linéaires effectuées pour chaque type de transitions, $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ (fig. 5.4) et $E_{2,3-} \rightarrow E_{3+,1}$ (fig. 5.5a), et $E_2 \rightarrow E_1$ (fig. 5.5b). Les résultats à 222 meV et 229 meV ont été obtenus avec le laser CO et les résultats à 800 meV avec une diode laser 1550 nm, les autres résultats correspondent aux mesures décrites dans les sections précédentes.

On observe une très bonne linéarité de l'inverse du champ magnétique de chaque absorption en fonction du nombre harmonique i . Seules les transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ et $E_2 \rightarrow E_1$ d'indice $i = 1$ semblent dévier de cette linéarité. Ceci s'explique par le facteur de correction de l'approximation **EBM**, que nous avons négligé, qui comporte un terme proportionnel à $1/i^2$ (voir Annexe).

La figure 5.6 représente la fréquence mesurée (la pente des courbes dans les figures 5.4-5.5) pour chaque type de transition en fonction de l'énergie. D'abord, on remarque que l'intersection (extrapolée) avec l'axe horizontal est égal à $E \simeq 0$, $E \simeq 2\gamma_1$ et $4\gamma_1$ comme attendue (voir equ. 5.2-5.3). On modélise la dépendance de la fréquence F_B en fonction de l'énergie avec les équations 5.2-5.3 en attribuant une vitesse de Fermi pour chaque type de transition. Les barres d'erreur en trait plein correspondent à l'écart type de la régression linéaire et les barres d'erreur en trait pointillé correspondent à la largeur à mi-hauteur des pics de fréquences de la figure 5.2. L'accord entre le modèle et les données est très bon. Ceci confirme que le système peut être décrit comme des fermions de Dirac relativiste avec une vitesse de Fermi constante. Notons que, comparée à la transformée de Fourier, cette procédure a permis d'améliorer nettement la définition de la fréquence en fonction de l'énergie.

En résumé, on peut tirer deux principales conclusions :

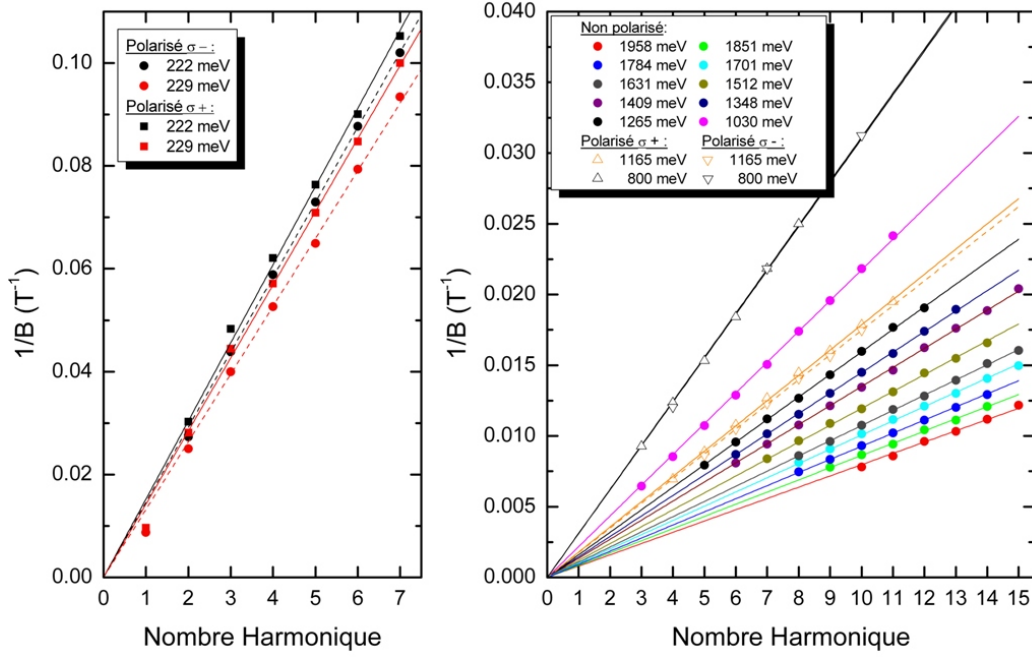


FIGURE 5.4 – Graphique représentant la position de l'inverse du champ magnétique des transitions interbandes $E_{3-}^{i-1} \rightarrow E_{3+}^i$ et $E_{3-}^i \rightarrow E_{3+}^{i-1}$ observées en fonction du nombre harmonique i pour plusieurs énergies. Les courbes représentent la régression linéaire pour chaque énergie.

- Les trois types de transitions peuvent être décrites par une vitesse moyenne de Fermi des deux bandes concernées (Ex : $v_F(E_{3-} \rightarrow E_{3+}) = \frac{v_F(E_{3-}) + v_F(E_{3+})}{2}$). Les transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ en noir et $E_2 \rightarrow E_1$ en rouge ont la même vitesse de Fermi égale à $v_F = 1.03 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$. Il apparaît que les points en bleu sont décrits avec une vitesse de Fermi $v_F = 1.1 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$. L'asymétrie électron - trou est inversée pour les bandes E_1 et E_2 [Koshino 2009]. On attend donc une vitesse de Fermi moyenne $v_F > 1.03 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$ pour les transitions $E_2 \rightarrow E_{3+}$ et $v_F < 1.03 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$ pour les transitions $E_{3-} \rightarrow E_1$. La valeur $v_F = 1.1 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$ mesurée suggère que l'on observe uniquement les transitions $E_2 \rightarrow E_{3+}$. La courbe verte sur la figure 5.6 représente une vitesse de Fermi $v_F = 0.945 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$ correspondant aux transitions $E_{3-} \rightarrow E_1$ (voir section suivante).
- Les transitions inter-bandes dans le graphite, illustrées sur la figure 5.7, ont un comportement relativiste jusqu'à 2 eV à température ambiante. Aucune déviation n'a été observée. L'influence des paramètres ($\gamma_2 \dots \Delta$) du modèle SWM est faible pour les hautes énergies. Nous pouvons maintenant exprimer la dispersion énergétique en

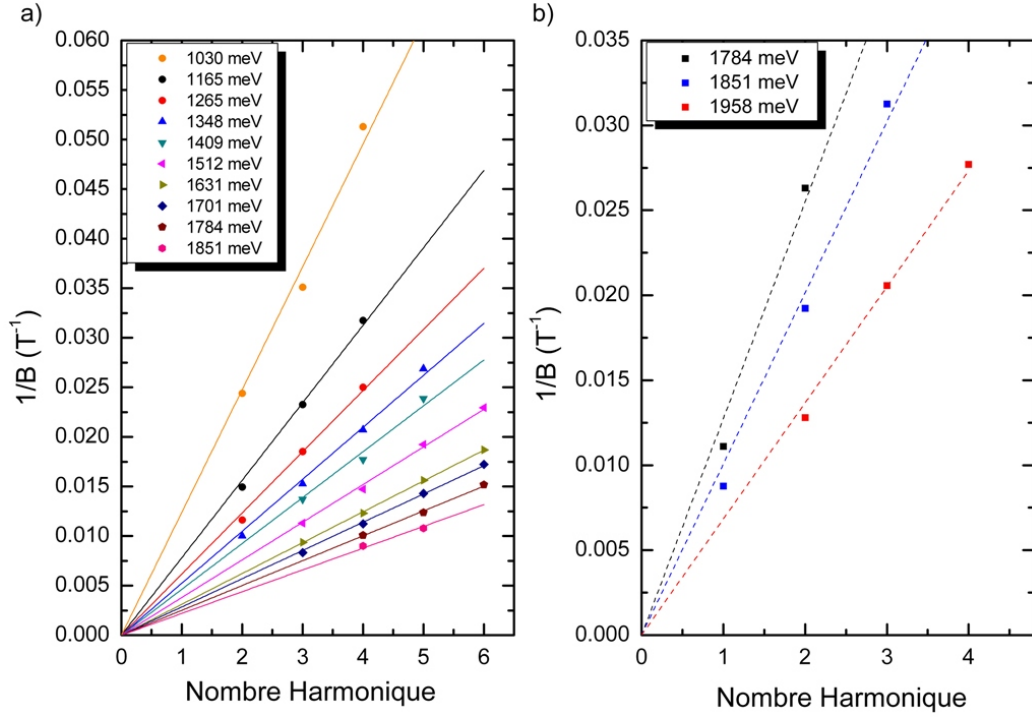


FIGURE 5.5 – a) Graphique représentant la position de l'inverse du champ magnétique des transitions interbandes $E_2^{i-1} \rightarrow E_{3+}^i$, $E_2^i \rightarrow E_{3+}^{i-1}$ et $E_{3-}^{i-1} \rightarrow E_1^i$, $E_{3-}^i \rightarrow E_1^{i-1}$ observées en fonction du nombre harmonique i pour chaque énergie. b) Graphique représentant la position de l'inverse du champ magnétique des transitions interbandes $E_2^{i-1} \rightarrow E_1^i$ et $E_2^i \rightarrow E_1^{i-1}$. Les courbes représentent la régression linéaire pour chaque énergie.

fonction de l'impulsion $p = \sqrt{2e\hbar F_B}$ et du vecteur d'onde κ telle que :

$$E_{E_{3-} \rightarrow E_{3+}} = 2\sqrt{\gamma_1^2 + p^2 v^2} - 2\gamma_1 = 2\sqrt{\gamma_1^2 + (\hbar\kappa)^2 v^2} - 2\gamma_1 \quad (5.6)$$

$$E_{E_2 \rightarrow E_{3+}} = 2\sqrt{\gamma_1^2 + p^2 v^2} = 2\sqrt{\gamma_1^2 + (\hbar\kappa)^2 v^2} \quad (5.7)$$

$$E_{E_2 \rightarrow E_1} = 2\sqrt{\gamma_1^2 + p^2 v^2} + 2\gamma_1 = 2\sqrt{\gamma_1^2 + (\hbar\kappa)^2 v^2} + 2\gamma_1 \quad (5.8)$$

où $m_0 v^2 = \gamma_1 = 385$ meV est l'énergie au repos et v la vitesse moyenne de Fermi.

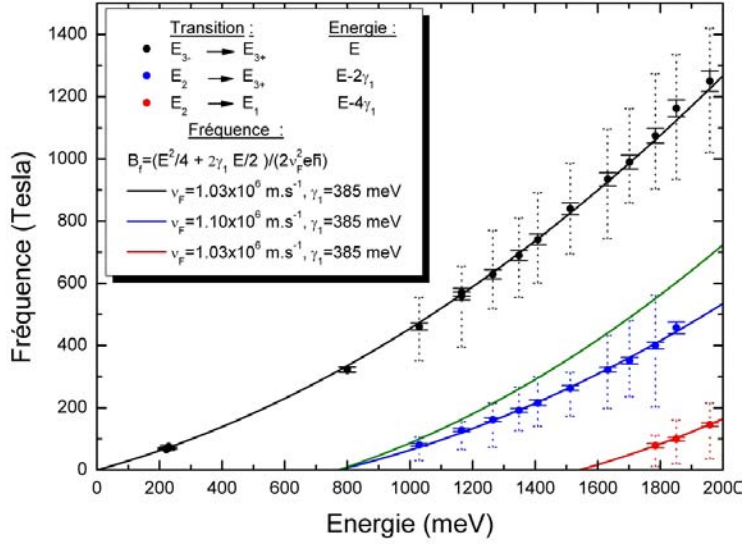


FIGURE 5.6 – Graphique représentant la fréquence magnétique F_B en fonction de l'énergie pour les trois types de transition. Les courbes sont issues de l'équation 5.2. La courbe verte correspond aux transitions $E_{3-} \rightarrow E_1$ avec une vitesse de Fermi $v_F = 0.945 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$. Les barres d'erreur en trait plein (pointillé) correspondent à l'écart type de la régression linéaire (largeur à mi-hauteur de la transformée de Fourier).

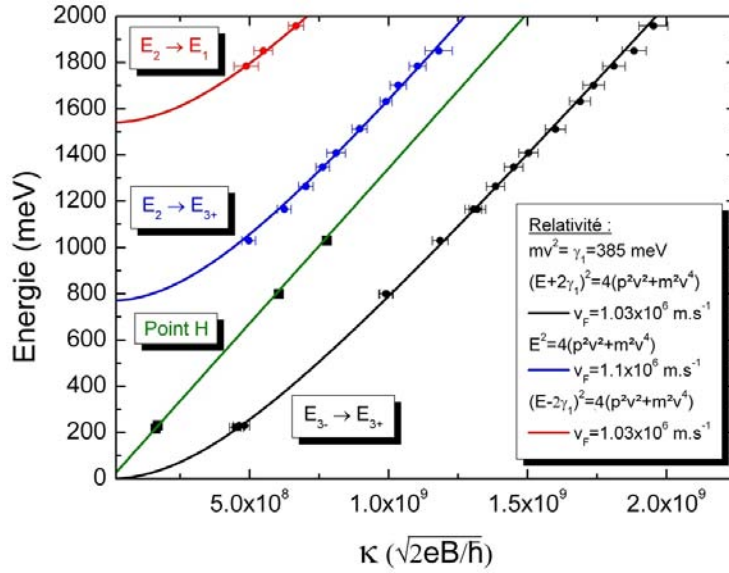


FIGURE 5.7 – Dépendance de l'énergie des trois types de transitions observées dans le graphite naturel cristallin en fonction du vecteur d'onde κ de la pseudo-particule paire électron-trou. La droite verte et les points noirs associés illustre le comportement des fermions de Dirac sans masse au point **H** (voir chapitre 6). La dispersion est en très bon accord avec la relativité $E = \sqrt{p^2 v^2 + m^2 v^4}$.

Il est également possible de considérer la dispersion énergétique pour chaque bande en considérant une particule relativiste d'énergie au repos $\gamma_1 = 385$ meV et une vitesse égale à la vitesse de Fermi de la bande. L'énergie des transitions entre une pseudo-particule relativiste (paire électron-trou) avec une vitesse de Fermi moyenne vers une particule relativiste avec une vitesse de Fermi pour chaque bande montre une différence relative inférieure à 0.6%. La figure 5.8 représente la dispersion énergétique des quatre bandes du graphite en fonction du vecteur d'onde ($\kappa(k_x, k_y)$). Les flèches violettes, grenat et kaki correspondent à l'énergie maximale des transitions observées, 1958 meV ($E_{3-} \rightarrow E_{3+}$), 1958 meV ($E_2 \rightarrow E_{3+}$) et 1851 meV ($E_2 \rightarrow E_1$) respectivement.

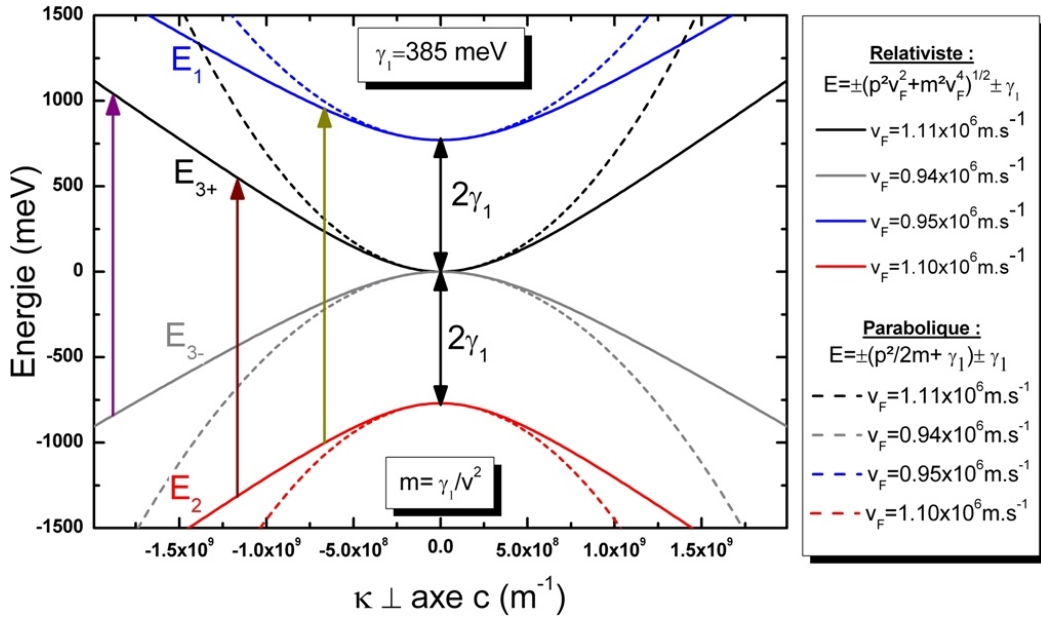


FIGURE 5.8 – Dispersion énergétique, au point **K**, des quatre bandes (E_1 , E_2 , E_{3-} , E_{3+}) du graphite en fonction du vecteur d'onde $\kappa(k_x, k_y)$. La dispersion relativiste est en trait plein avec une masse au repos, $m = \gamma_1$. A basse énergie ($E < \gamma_1$), la dispersion au point **K** peut être décrite comme parabolique (tiret) avec une masse effective, $m^* = \frac{2\gamma_1}{2v^2}$. Les flèches violettes, grenat et kaki correspondent à l'énergie maximale des transitions observées, 1958 meV, 1958 meV et 1851 meV respectivement.

Néanmoins, la dispersion au point **K** du graphite peut être considéré comme parabolique pour des faibles impulsions ($|\kappa| \lesssim 2 \times 10^8 \text{ m}^{-1}$). Elle est indiquée en pointillé avec une masse effective, $m^* = \frac{\lambda_m \gamma_1}{2v^2}$. En prenant en compte l'asymétrie électron-trou, on obtient quatre masses effectives pour chaque bande ($m_{E_1}^* = 0.076 m_0$, $m_{E_2}^* = 0.0567 m_0$, $m_{E_{3-}}^* = 0.0776 m_0$, $m_{E_{3+}}^* = 0.0557 m_0$) en fonction de la masse de l'électron libre m_0 . La valeur moyenne est de $0.0665 m_0$ en accord avec les précédents résultats [Orlita 2009, McCann 2006].

5.3 Modélisation avec le modèle du bicouche effectif (EBM)

Maintenant que nous avons les valeurs en champ magnétique des pics d'absorption en fonction de chaque longueur d'onde et de chaque type de transitions, il est possible de modéliser la dépendance énergétique des transitions en fonction du champ magnétique. Nous avons utilisé le modèle du bicouche effectif (EBM). L'avantage de ce modèle est d'avoir un minimum de paramètres pour la description des transitions du graphite au point **K** ($\lambda_m = 2$). Nous utiliserons des vitesses de Fermi différentes (différents γ_0) associées à chaque bande (E_1 , E_2 , E_{3-} , E_{3+}) pour prendre en compte l'asymétrie électron-trou. L'ajustement des paramètres (γ_0 et γ_1) a été fait en deux étapes.

La première étape consiste à ajuster les vitesses de Fermi des bandes $v_F(E_{3-})$ et $v_F(E_{3+})$ grâce aux transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ et en utilisant les mesures à bas champ déjà effectuées [Chuang 2009, Orlita 2009]. La deuxième étape consiste à utiliser les transitions $E_2 \rightarrow E_1$ pour mesurer le paramètre γ_1 . La différence d'énergie entre les bandes E_2 et E_1 au point **K** est égale exactement à $4\gamma_1$ à champ nul. L'asymétrie électron-trou est inversée pour ces bandes [Koshino 2009]. On utilise une valeur approchée des vitesses de Fermi $v_F(E_1) \approx v_F(E_{3-})$ et $v_F(E_2) \approx v_F(E_{3+})$ pour mesurer le paramètre γ_1 puis on réajuste les vitesses de Fermi.

Transition $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ au point **K** : ajustement des vitesses de Fermi

La figure 5.9 montre la dépendance des pics d'absorption (haute fréquence) pour chaque énergie en fonction du champ magnétique. Les transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ au point **K** sont représentées en noir ($\Delta n = +1$) et en rouge ($\Delta n = -1$). Pour la bonne attribution des absorptions observées, nous avons utilisé les données issus des travaux de Chuang [Chuang 2009] et Orlita [Orlita 2009] en utilisant les mêmes vitesses de Fermi $v_F(E_{3+}) = 1.11 \text{ m.s}^{-1}$ et $v_F(E_{3-}) = 0.94 \text{ m.s}^{-1}$. Les résultats sont en très bon accord et permettent de suivre l'évolution des transitions sur une large gamme de champ magnétique (0 à 160 T). Notons que malgré les conditions expérimentales difficiles dans l'installation Mégagauss (impulsion ultra-courte), nous arrivons à mesurer des transitions interbandes avec un nombre quantique allant jusqu'à $n=14,15$ à température ambiante.

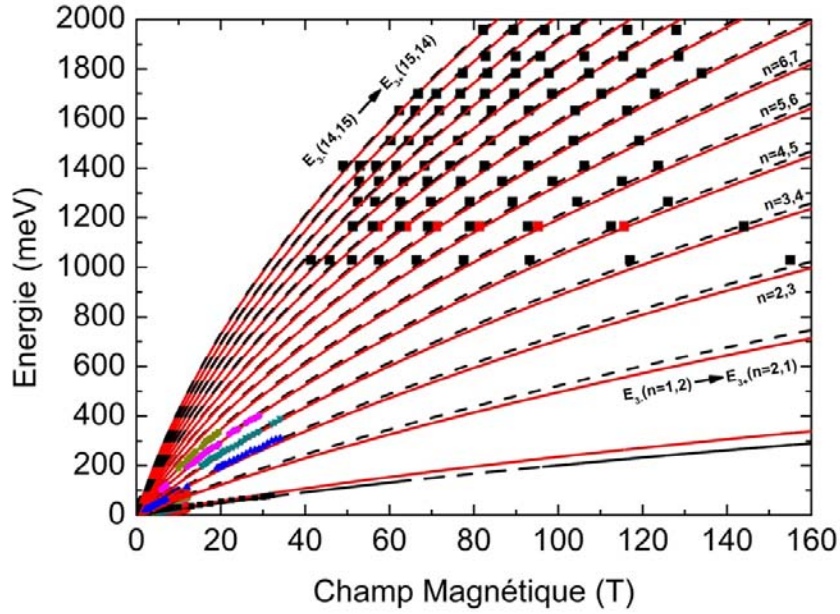


FIGURE 5.9 – Transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ observées à différentes longueurs d’onde (1204 nm à 633 nm) à température ambiante. Modèle du bicouche effectif avec $\gamma_1 = 385$ meV et $v_F(E_{3+}) = 1.11 \text{ m.s}^{-1}$, $v_F(E_{3-}) = 0.94 \text{ m.s}^{-1}$. Les points à bas champ (<12 T) ont été obtenus par Chuang [Chuang 2009], les points entre 5 T et 35 T ont été obtenus par Orlita [Orlita 2009].

Transition $E_2 \rightarrow E_1$ au point K : ajustement du paramètre $\lambda_m \gamma_1$

Les transitions entre les niveaux de Landau des bandes E_2 et E_1 n’ont jamais été vues optiquement dans le graphite sous champ magnétique. La figure 5.10 représente l’énergie (695 nm \rightarrow 1.784 eV, 670 nm \rightarrow 1.85 eV et 633 nm \rightarrow 1.96 eV) des absorptions observées de la figure 5.3 en fonction du champ magnétique. Ces transitions correspondent à la fréquence F_3 comprises entre 50 T (695 nm) et 150 T (633 nm) de la figure 5.2. Les lignes noires (rouges) représentent les transitions $E_2 \rightarrow E_1$ $\Delta n = -1$ ($\Delta n = +1$) calculées avec le modèle du bicouche effectif. La valeur mesurée du paramètre γ_1 déduit est de 385 meV. Les valeurs des vitesses de Fermi après ajustement sont égales à $v_F(E_1) = 0.95 \text{ m.s}^{-1}$ et $v_F(E_2) = 1.10 \text{ m.s}^{-1}$. On observe un bon accord avec les prédictions du modèle **EBM**. Seules les transitions fondamentales $E_2^{n=0(1)} \rightarrow E_1^{n=1(0)}$ ne semblent pas correspondre exactement. Cet effet pourrait être une conséquence d’un anti-croisement des niveaux de Landau des bandes E_{3-} et E_2 et/ou d’un anti-croisement des niveaux de Landau des bandes E_{3+} et E_1 .

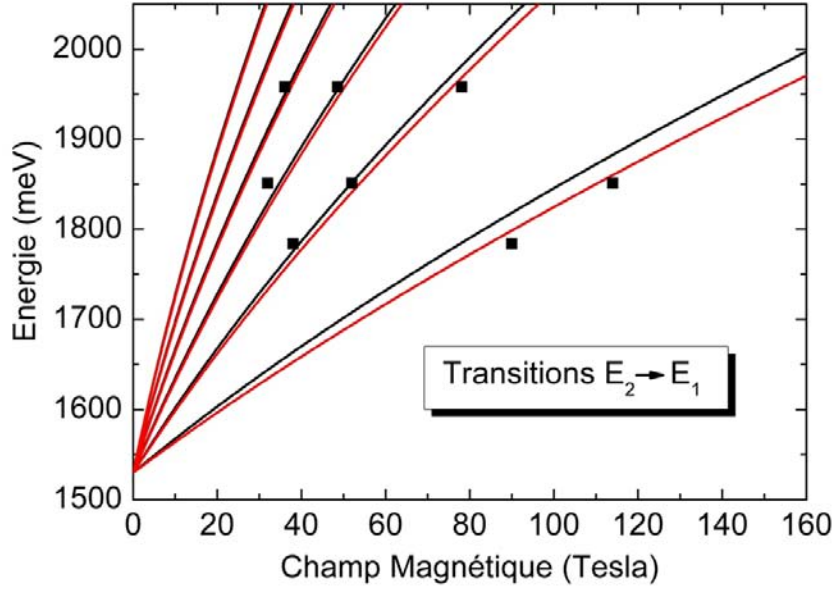


FIGURE 5.10 – Pics d’absorptions observés (carré noir) pour trois longueurs d’onde (695 nm, 670 nm et 633 nm) après filtrage (coupe-bande). Transitions $E_2 \rightarrow E_1$ au point **K** calculées avec le modèle **EBM** avec les paramètres $\gamma_1 = 0.385 \text{ eV}$, $v_F(E_1) = 0.95 \text{ m.s}^{-1}$, $v_F(E_2) = 1.10 \text{ m.s}^{-1}$. Les transitions $\Delta n = 1$ ($\Delta n = -1$) sont représentées en rouge (noir).

Transition $E_2 \rightarrow E_{3+}$ et $E_{3-} \rightarrow E_1$ au point **K : influence des paramètres Δ , γ_2 , γ_5**

Maintenant que nous avons trouvé les paramètres du modèle **EBM**, nous pouvons étudier les transitions $E_2 \rightarrow E_{3+}$ et $E_{3-} \rightarrow E_1$ qui sont plus complexes. Selon le modèle **SWM**, l’énergie entre E_2 et E_{3+} est égale à $(2\gamma_1 + 2\gamma_2 - 2\gamma_5 - \Delta)$ et l’énergie entre E_{3-} et E_1 est égale à $(2\gamma_1 - 2\gamma_2 + 2\gamma_5 + \Delta)$ à champ nul. Dans un premier temps, nous allons prendre le modèle **EBM** avec les paramètres précédents puis nous étudierons l’influence des paramètres additionnels du modèle **SWM** sur ces transitions.

L’énergie des absorptions correspondant aux fréquences F_2 comprises entre 50 T (1204 nm) et 400 T (730 nm) de la figure 5.2 est indiquée sur la figure 5.11 en fonction du champ magnétique. Les transitions $E_2 \rightarrow E_{3+}$ et $E_{3-} \rightarrow E_1$, calculées avec le modèle **EBM**, sont indiquées en bleu et en rouge respectivement.

Ces deux types de transition ont des valeurs très proches l’une de l’autre. Cependant, dans la section précédente, nous avons mis en évidence l’observation unique des transitions $E_2 \rightarrow E_{3+}$ grâce à la valeur élevée de la vitesse de Fermi moyenne. Le modèle du bi-couche effectif est en très bon accord pour des énergies supérieures à 1.3 eV mais une

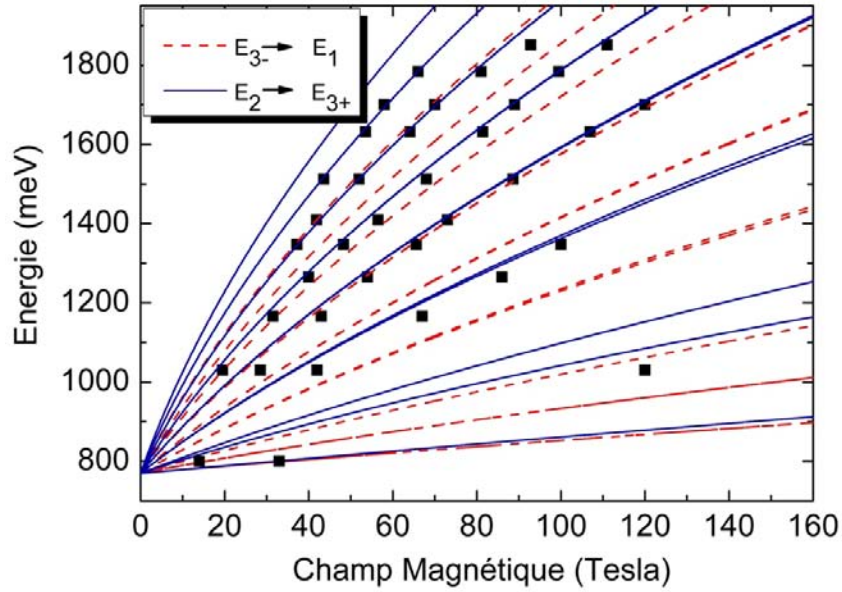


FIGURE 5.11 – Absorptions observées (point noir) à basse fréquence (F_2) en fonction du champ magnétique. Transitions $E_2 \rightarrow E_{3+}$ (en bleu) et $E_{3-} \rightarrow E_1$ (en rouge) calculées avec le modèle du bicouche effectif avec différentes valeurs de vitesse de Fermi, $v_F(E_1) = 0.95 \text{ m.s}^{-1}$, $v_F(E_2) = 1.10 \text{ m.s}^{-1}$, $v_F(E_{3-}) = 0.94 \text{ m.s}^{-1}$, $v_F(E_{3+}) = 1.11 \text{ m.s}^{-1}$ et $\gamma_1 = 385 \text{ meV}$.

déviante est présente à plus basse énergie. Le modèle effectif ne prend pas en compte les paramètres γ_2 , γ_5 et Δ du modèle **SWM** (voir figure 3.5). Ces trois paramètres décalent l'énergie des niveaux E_1 et E_2 d'une valeur $2\gamma_5$ et Δ et l'énergie des niveaux E_3 de $2\gamma_2$ à champ nul. Il en résulte une différence d'énergie égale à $\delta = 2(\Delta - 2\gamma_2 + 2\gamma_5)$ entre les transitions $E_2 \rightarrow E_{3+}$ et $E_{3-} \rightarrow E_1$. La figure 5.12 montre l'effet de l'ajout d'un décalage sur les deux types de transitions. Cette modification est dite "approximation de décalage rigide" car les paramètres Δ , γ_2 , γ_5 entrent dans le calcul de la diagonalisation de l'Hamiltonien et en réalité induisent des effets variables en fonction de l'énergie. Cependant, leur influence décroît à mesure de l'augmentation de l'énergie des transitions.

On constate que les pics d'absorption semblent coïncider avec l'observation d'un unique type de transition ($E_2 \rightarrow E_{3+}$). Le meilleur accord avec le modèle correspond à un décalage compris entre 0-40 meV. Le manque de données dans la gamme $B < 20 \text{ T}$ et $E < 1 \text{ eV}$ ne nous permet pas de mesurer précisément les paramètres $2(\Delta - 2\gamma_2 + 2\gamma_5)$. De plus, il n'est en général pas possible de mesurer avec précision les petits paramètres **SWM**, quelque soient les techniques utilisées, car les quantités mesurées dépendent toujours fortement des paramètres plus grands (γ_0 , γ_1 , γ_3).

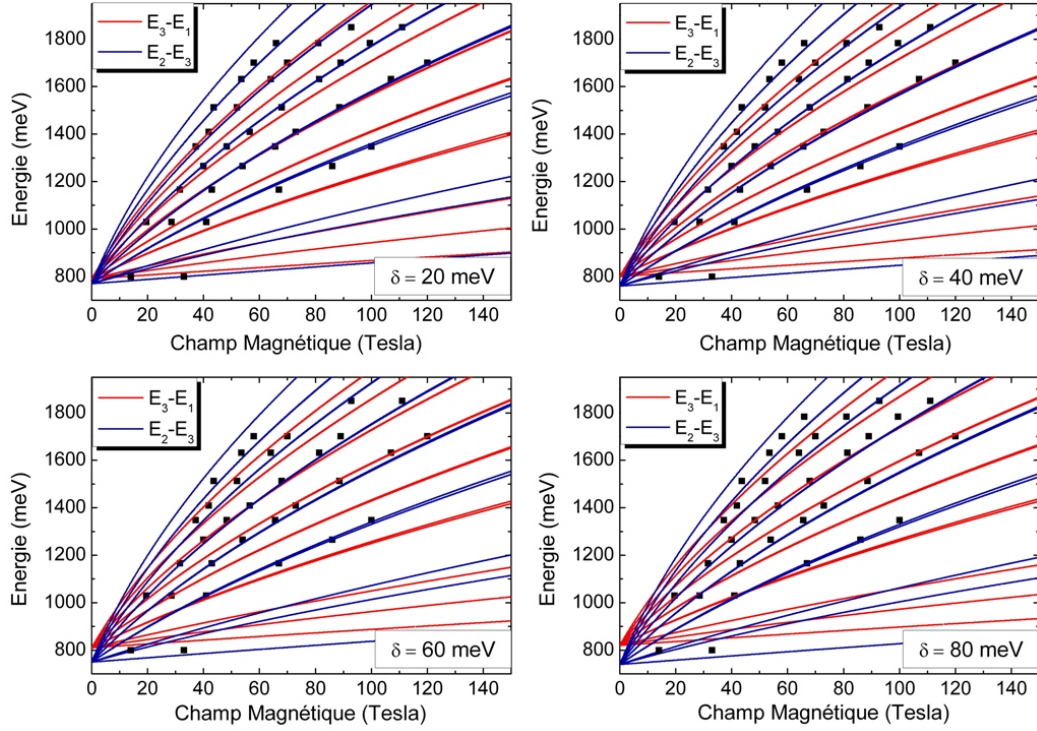


FIGURE 5.12 – Transitions $E_2 \rightarrow E_{3+}$ (en bleu) et $E_{3-} \rightarrow E_1$ (en rouge) en utilisant le modèle du bicouche effectif avec différentes valeurs de vitesse de Fermi, $v_F(E_1) = 0.95 \text{ m.s}^{-1}$, $v_F(E_2) = 1.10 \text{ m.s}^{-1}$, $v_F(E_{3-}) = 0.94 \text{ m.s}^{-1}$, $v_F(E_{3+}) = 1.11 \text{ m.s}^{-1}$ et $\gamma_1 = 385 \text{ meV}$. L'influence du décalage entre les deux types de transitions, engendrés par les paramètres $\delta = 2(\Delta - 2\gamma_2 + 2\gamma_5)$, est illustré.

Le modèle du bicouche effectif a montré la bonne modélisation des pics d'absorption mesurés à hautes énergies jusqu'à 160 T. Cette observation confirme que les paramètres γ_0 et γ_1 sont prédominants, surtout loin du niveau de Fermi. Les trois types de transitions peuvent être décrites avec une seule valeur du paramètre $\gamma_1 = 385 \text{ meV}$. L'asymétrie électron-trou, apportée par les paramètres (γ_4, γ_5 et terme de l'électron libre) est modélisée en prenant des vitesses de Fermi différentes pour chaque bande. Grâce au nombre important des transitions observées, il est possible de mesurer la dispersion énergétique et de confirmer le caractère relativiste des électrons dans le graphite à température ambiante.

Les différents paramètres utilisés pour les niveaux de Landau et les transitions sont résumés dans le tableau 5.1.

Bande	γ_1 meV	Vitesse de Fermi $10^6 m.s^{-1}$	Transition	γ_1 meV	Vitesse de Fermi $10^6 m.s^{-1}$
E_1	385	0.95	$E_{3-} \rightarrow E_{3+}$	385	1.03
E_2	385	1.10	$E_2 \rightarrow E_{3+}$	385	1.10
E_{3-}	385	0.94	$E_{3-} \rightarrow E_1$	xxx	non observée
E_{3+}	385	1.11	$E_2 \rightarrow E_1$	385	1.03

TABLE 5.1 – Valeurs mesurées des vitesse de Fermi pour chaque bande et chaque transition.

5.4 Largeurs des transitions dans le graphite :

La largeur Γ des niveaux de Landau due à la diffusion électronique induit un chevauchement entre niveaux contigus qui rend plus difficile les mesures de magnéto-transmission. Les pics d'absorption mesurés ne peuvent être précisément modélisés par une fonction Lorentzienne. Pour mesurer la largeur à mi-hauteur Γ de ces pics, il est possible d'utiliser le comportement exponentiel de l'amplitude A des absorptions en fonction du champ magnétique.

Ce comportement peut être écrit sous la forme :

$$\frac{\Delta A}{A} \sim e^{-\frac{\pi}{\tau \omega_c}} = e^{-\frac{2\pi\Gamma}{\hbar \omega_c}} \quad (5.9)$$

où ω_c est la fréquence cyclotron et $\tau = \frac{\hbar}{2\Gamma}$ est le temps caractéristique de diffusion et 2Γ est la largeur de la transition.

La figure 5.13 montre le comportement de la magnéto-transmission à 820 nm correspondant aux transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$. Le signal a été filtré en fréquence (Fourier passe haut) pour isoler les transitions $E_{3-} \rightarrow E_{3+}$ des autres types de transitions.

L'équation 5.9 est identique au facteur d'amortissement R_D de Dingle [Shoenberg 1984] des oscillations quantiques dans les mesures de transport et d'aimantation. Pour la transition interbande, la séparation $\delta\varepsilon = \hbar\omega_c$ entre deux niveaux E_3 de Landau est :

$$\delta\varepsilon = \frac{E(E + 2\gamma_1)}{4n(E + \gamma_1)} \quad (5.10)$$

La valeur de $\hbar\omega_c$ correspond à la séparation entre deux transitions d'ordre différent, 2 $\delta\varepsilon$.

On obtient :

$$\frac{\Delta A}{A} \propto e^{-\frac{4n\pi\Gamma(E+\gamma_1)}{E(E+2\gamma_1E)}} \quad (5.11)$$

On trouve un facteur d'amortissement constant pour chaque résonance harmonique avec un changement $\Delta i = 1$.

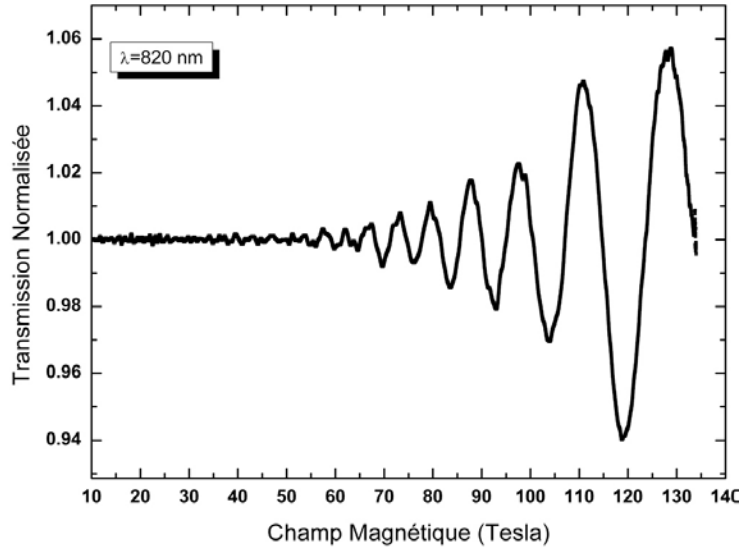


FIGURE 5.13 – Signal de magnéto-transmission du graphite naturel cristallin à 820 nm filtré en fréquence (passe haut) illustrant le comportement exponentiel des pics d'absorption.

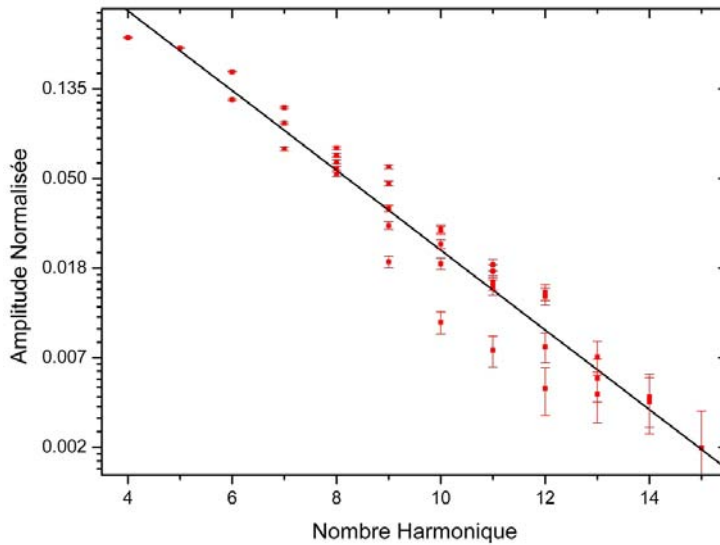


FIGURE 5.14 – Amplitude (échelle logarithmique) des oscillations ($E = 1.165 \text{ eV}$ à $E = 1.698 \text{ eV}$) en fonction du nombre harmonique. La ligne droite rouge correspond à l'exponentielle décroissante ajustée.

La figure 5.14 représente les amplitudes normalisées des absorptions avec une échelle logarithmique en fonction du nombre harmonique i pour les énergies comprises entre $E = 1.165 \text{ eV}$ à $E = 1.698 \text{ eV}$. En modélisant avec une fonction exponentielle, nous pou-

vons identifier le coefficient d'amortissement avec la largeur Γ . Nous trouvons une valeur de $\Gamma = 65 \pm 10$ meV pour les transitions à hautes énergies et à température ambiante. Cette valeur est en bon accord avec la valeur, $\Gamma = 70$ meV mesurée en magnéto-transmission jusqu'à 60 T avec le générateur 14 MJ [Ubrig 2011].

La figure 5.15 représente les amplitudes normalisées des absorptions avec une échelle logarithmique en fonction du nombre harmonique i pour les énergies comprises entre $E = 0.222$ eV à $E = 0.2346$ eV. Nous trouvons une valeur de $\Gamma = 13 \pm 3$ meV pour

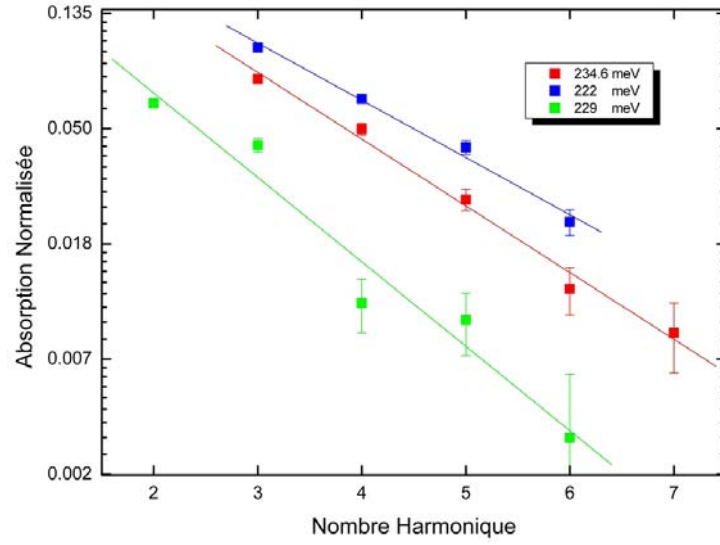


FIGURE 5.15 – Amplitude (échelle logarithmique) des oscillations en fonction du nombre harmonique pour trois valeurs de l'énergie du Laser (222 meV en bleu, 229 meV en vert et 234.6 meV en rouge). Les courbes correspondent à la régression linéaire.

les transitions à basses énergies et à température ambiante. Cette valeur est très faible comparée à celle obtenue à plus hautes énergies ($\Gamma = 65 \pm 10$ meV). Cet effet peut être expliqué qualitativement par la relaxation ultra-rapide d'un phonon optique (~ 200 meV) entre deux niveaux de Landau. Ce phénomène n'est possible qu'à haute énergie, où l'écart entre les niveaux de Landau est de l'ordre du phonon optique.

5.5 Conclusion :

Dans ce chapitre, nous avons démontré que les électrons au point **K** du graphite peuvent être considérés comme des fermions de Dirac massifs. Les électrons dans le graphite au point **K** sont relativistes même à une énergie supérieure à 1 eV. Pour des énergies inférieures à $\sim \gamma_1$, les paramètres ($\gamma_2 \dots \Delta$) du modèle **SWM** induisent d'importantes modifications de la relation de dispersion. Dans cette gamme d'énergie la relation de dispersion

peut être assimilée à une dispersion parabolique. Au contraire, à plus haute énergie, la linéarité avec le champ magnétique n'est plus respectée et les électrons sont décrits comme des particules relativistes avec une énergie au repos $mv^2 = 385$ meV et des vitesses de Fermi différentes pour chaque bande E_1, E_2, E_{3-}, E_{3+} .

La bonne description des transitions avec le modèle du bicouche effectif montre que le graphite naturel cristallin possède un bon empilement AB sur au moins une vingtaine de couches ($\lambda_m \sim 2$) [Koshino 2009]. Le modèle du bicouche effectif apparaît donc comme une description limite des électrons dans le graphite à haute énergie où l'influence des paramètres ($\gamma_2 \dots \Delta$) du modèle **SWM** peut être négligée.

Nous avons également observé l'influence du phonon optique (~ 200 meV) sur la largeur des niveaux de Landau. Lorsque l'écart entre deux niveaux de Landau successifs est de l'ordre de l'énergie du phonon, une relaxation est possible et induit un élargissement des niveaux de Landau 5 fois plus importants.

Etude des échantillons de graphène épitaxié

Ce chapitre décrira les résultats obtenus sur deux échantillons de graphène épitaxié sur SiC en utilisant le générateur Mégagauss du LNCMI. Tout d'abord, la première partie décrira les mesures des transitions interbandes au point **K** du graphène permettant de confirmer leur dépendance en racine carrée du champ magnétique. La deuxième partie sera consacrée à la comparaison des signaux du graphite et du graphène permettant d'isoler les transitions interbandes au point **K** pour le graphite et, de mettre en avant les différentes inclusions dans le graphène épitaxié. Finalement, nous tenterons de mesurer l'asymétrie électron-trou dans le graphène.

6.1 Transitions aux points **K** du graphène :

Pour mesurer la dépendance de l'énergie des transitions dans le graphène en fonction du champ magnétique, nous avons effectué des mesures de magnéto-transmission dans l'infrarouge à température ambiante sur du graphène épitaxié provenant de deux sources différentes. L'échantillon d'Atlanta a été fabriqué par sublimation sur la face carbone du substrat SiC. L'échantillon de Varsovie a été fabriqué par dépôt chimique en phase vapeur de propane (CVD) sur la face silicium. La figure 6.1 montre le signal de magnéto-transmission sur un échantillon d'Atlanta, moyenné (montée/descente du champ), effectué avec le laser CO pour différentes énergies (216-235 meV). L'échelle est normalisée à la transmission à champ nul et au pic d'absorption maximum.

On observe clairement deux transitions interbandes ($LL_{0,-1} \rightarrow LL_{1,0}$ et $LL_{-1,-2} \rightarrow LL_{2,1}$) caractéristiques du graphène au point **K** ou du graphite au point **H** (fermions de Dirac de masse nulle dans les deux cas). Les pics d'absorption indiqués par une flèche correspondent à des transitions du graphite au point **K** (fermions de Dirac avec masse). Donc, on peut déjà tirer une première conclusion ; les échantillons de graphène épitaxié peuvent contenir des inclusions de graphite. Une étude comparative sera effectuée dans la prochaine section. Les valeurs en champ magnétique des transitions interbandes observées montrent une forte dépendance avec l'énergie incidente et l'amplitude relative de chaque

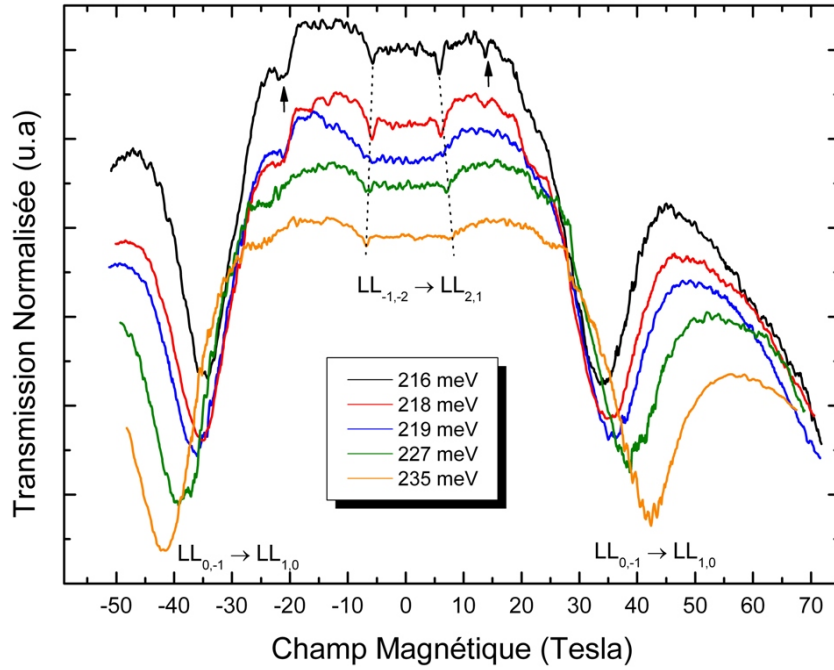


FIGURE 6.1 – Transmission non polarisée et normalisée (moyennée sur la montée/descente) de l'échantillon de graphène épitaxié (Atlanta) pour différentes énergies . Les flèches en noires indiquent la présence d'inclusions de graphite. Chaque signal comporte une échelle normalisée à la transmission à champ nul et au pic d'absorption maximum pour des raisons de clarté.

transition pour une énergie donnée est conservée. La précision de la mesure (erreur < 2%), couplée à la moyenne des deux observations (champ positif/négatif) permet l'étude de ces transitions.

La figure 6.2a montre la valeur en champ magnétique des pics d'absorption obtenus à 216-235 meV, 800 meV et 1.03 eV à température ambiante. Les lignes noire, rouge et verte représentent les régressions en racine carrée des transitions interbandes ($E_{n \rightarrow n+1} = v_F \sqrt{2e\hbar B} (\sqrt{n} + \sqrt{n+1})$) pour des fermions de masse nulle (**K**-graphène et/ou **H**-graphite), $LL_{0,-1} \rightarrow LL_{1,0}$, $LL_{-1,-2} \rightarrow LL_{2,1}$ et $LL_{-2,-3} \rightarrow LL_{3,2}$ respectivement. Les transitions suivent parfaitement la dépendance $E \propto \sqrt{B}$ attendue pour les fermions de Dirac de masse nulle. Les vitesses de Fermi indiquées sur la figure 6.2a montrent une dispersion inférieure à 2%. La figure 6.2b représente l'énergie normalisée $E = v_F \sqrt{2e\hbar B}$ à la transition interbande fondamentale $LL_{0,-1} \rightarrow LL_{1,0}$ en fonction de la racine carrée du champ magnétique.

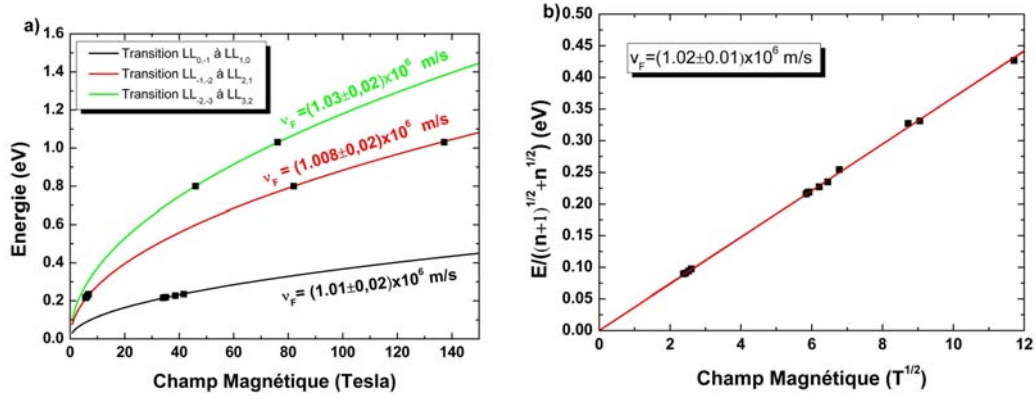


FIGURE 6.2 – a) Valeur en champ magnétique des pics d’absorption observés (points noirs) sur l’échantillon de graphène épitaxié (Atlanta). Les lignes modélisent l’énergie des trois premières transitions pour les fermions de Dirac sans masse avec une vitesse de Fermi spécifique. b) Energie normalisée à la transition fondamentale (divisée par $\sqrt{|n|+1} + \sqrt{|n|}$) en fonction de la racine carrée du champ magnétique pour calculer la vitesse de Fermi moyenne.

La valeur moyenne trouvée (pente de la régression linéaire) pour la vitesse de Fermi ($v_F = (1.02 \pm 0.01) \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$) correspond aux précédentes mesures effectuées sur un échantillon de graphène épitaxié [Plochocka 2008].

6.2 Comparaison graphène/graphite

Grâce à la comparaison entre les résultats de magnéto-transmission obtenu à 800 meV, nous avons étudié les propriétés de trois type d’échantillons ; le graphite cristallin utilisé précédemment, le graphène d’Atlanta et le graphène épitaxié de Varsovie (voir partie 2.2). Dans une première partie, je présenterai la méthode empirique utilisée pour séparer les différentes contributions des fermions de Dirac avec et sans masse dans chaque échantillon. Puis, en séparant les différentes contributions, nous pourrions mettre en évidence l’importance des inclusions de graphite et de bicouche réel de graphène dans le graphène épitaxié.

Méthode

Les électrons au voisinage du point **H** du graphite et du point **K** du graphène ont un comportement similaire (fermions de Dirac de masse nulle). La seule différence provient du terme Δ , de l’ordre de quelques meV. Ce terme peut être négligé car il est petit devant l’énergie des niveaux de Landau mise en jeu. Il est donc possible de comparer directement les mesures effectuées avec le graphite et le graphène épitaxié. Nous allons comparer le signal

de transmission du graphène épitaxié $f_{epitaxie}(B)$ et le signal de transmission du graphite $f_{graphite}(B)$. On considère ici que le graphène comporte des inclusions de graphite et que le graphite ne comporte aucune monocouche isolée (inclusion de graphène).

$$f_{epitaxie}(B) = f_0(B) + \alpha f_{graphite}(B) \quad (6.1)$$

$$f_{graphite}(B) = N(f_0(B) + f_m(B)) \quad (6.2)$$

où $f_0(B)$ représente la contribution des fermions de Dirac sans masse (provenant des monocouches) dans les échantillons de graphène épitaxiés, $\alpha f_{graphite}(B)$ représente la contribution des inclusions de graphite, $N f_0(B)$ représente la contribution des transitions avec les fermions de Dirac sans masse dans le graphite (point **H**) et $N f_m(B)$ représente la contribution des transitions avec les fermions de Dirac avec masse dans le graphite (point **K**). Ici, N est liée au nombre de couches effectives.

Pour faciliter les calculs, on considère le signal $f(B) = T(B) - 1$, où $T(B)$ est la transmission normalisée à sa valeur à champ nul ($T(0) = 1$). Une valeur positive correspond à une augmentation de la transmission, une valeur négative correspond à une diminution de la transmission.

En utilisant les équations 6.1 et 6.2, la contribution $f_m(B)$ provenant des fermions de Dirac avec masse (point **K** du graphite) peut s'écrire :

$$f_m(B) = \frac{f_{graphite}(B)}{N} - f_0(B) \quad (6.3)$$

$$f_m(B) = f_{graphite}(B) \left(\frac{1}{N} + \alpha \right) - f_{epitaxie}(B) \quad (6.4)$$

Nous pouvons obtenir $f_m(B)$ en faisant une soustraction des spectres expérimentaux du graphène et du graphite. Le coefficient de pondération $\frac{1}{N} + \alpha$ est obtenu lorsque l'amplitude des pics d'absorption successifs devient exponentiellement croissante. Comme démontré précédemment dans la partie 5.4, ce comportement est caractéristique des transitions au point **K** dans le graphite.

En utilisant les équations 6.1 et 6.2, la contribution $f_0(B)$ provenant des fermions de Dirac sans masse (monocouches uniquement) dans le graphène épitaxié peut s'écrire :

$$f_0(B) = f_{epitaxie}(B) - \alpha f_{graphite}(B) \quad (6.5)$$

Nous pouvons obtenir le spectre d'absorption du graphène $f_0(B)$ en faisant une soustraction des spectres expérimentaux du graphène et du graphite. En ajustant le paramètre α , il est possible d'isoler la contribution provenant des fermions de Dirac sans masse (point **K**

du graphène uniquement). Cet ajustement se fait en annulant les transitions spécifiques du point **K** du graphite.

6.2.1 Décomposition du graphite : Contribution majoritaire des fermions de Dirac avec masse

La figure 6.3a montre le spectre d'absorption dans le graphite (6.4a), le résultat de la décomposition au point **K** (figure 6.3b) et au point **H** (figure 6.3c) obtenu sur le graphite cristallin à 800 meV.

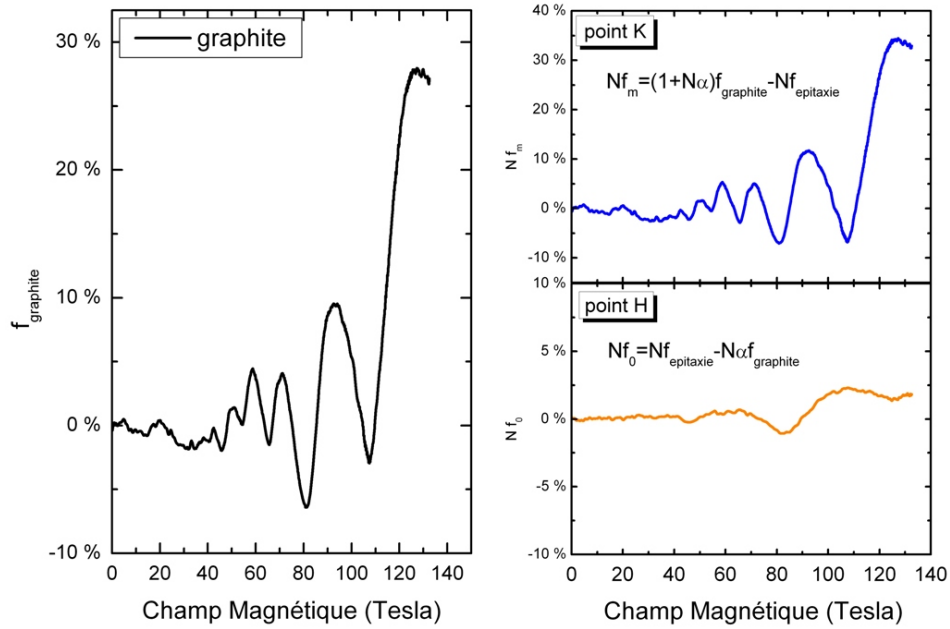


FIGURE 6.3 – a) Signal brut f_{graphite} du graphite cristallin à 800 meV. b) Contribution Nf_K (point **K**) dans le graphite. c) Contribution Nf_H (point **H**) dans le graphite.

On observe que la contribution f_K au point **K** est largement majoritaire. Cette observation est liée à la densité d'états selon k_z et à la différence de largeur des transitions à température ambiante.

6.2.2 Décomposition du graphène : Contribution majoritaire des fermions de Dirac sans masse

La figure 6.4 montre le spectre d'absorption (6.4a), le résultat de la décomposition pour des fermions de Dirac sans masse provenant des monocouches (figure 6.4b) et des inclusions

de graphite (figure 6.4c) obtenu sur deux échantillons de graphène épitaxié à 800 meV.

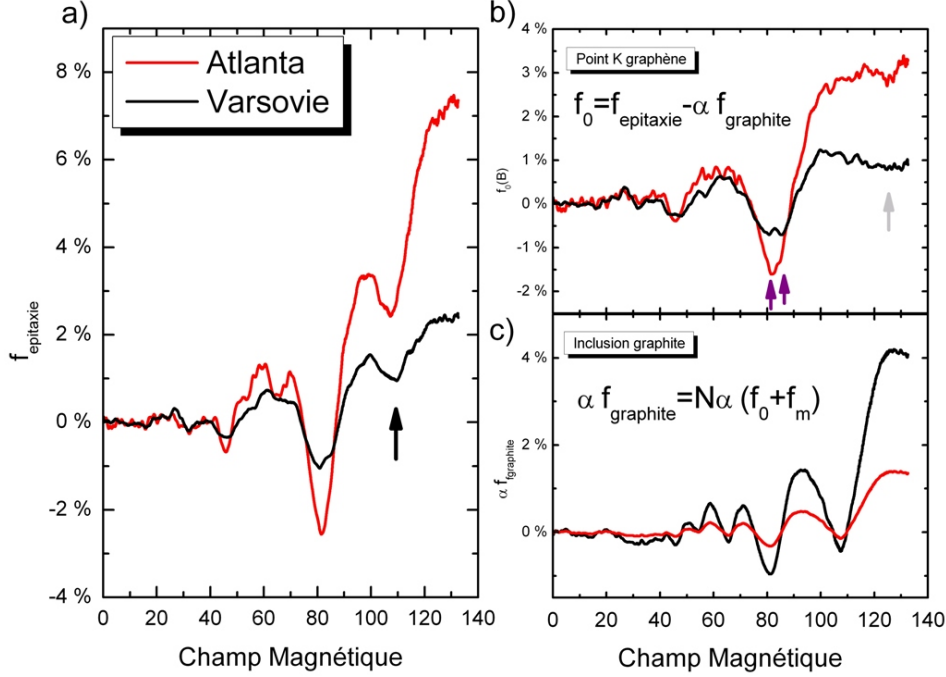


FIGURE 6.4 – a) Signal brut f_{epitaxie} du graphène épitaxié (Atlanta en rouge et Varsovie en noir) à 800 meV. b) Contribution des fermions de Dirac sans masse f_0 dans le graphène. c) Contribution des inclusions de graphite $\alpha f_{\text{graphite}}$ (Ceci correspond au signal soustrait de f_{epitaxie} dans (b)).

On observe que les contributions sont majoritaires pour les fermions de Dirac sans masse (i.e point **K** du graphène) dans les deux échantillons de graphène. Ceci est la preuve que la majorité des monocouches est isolée. Pour mesurer la proportion des inclusions de graphite il est nécessaire de comparer chacune des contributions (monocouche et inclusion de graphite) des fermions de Dirac sans masse. Les contributions provenant des inclusions s'écrit $N\alpha$ et provenant des monocouches est de 1. La proportion venant du graphite β s'écrit donc :

$$\beta = \frac{N\alpha}{1 + N\alpha} \quad (6.6)$$

Les différents paramètres ajustés ainsi que les proportions dans chaque échantillon sont résumés dans le tableau 6.1.

	Atlanta	Varsovie
α	0.16	0.05
N	0.72	1.66
$\beta = \frac{N\alpha}{(1+N\alpha)}$	$10 \pm 3\%$	$8 \pm 2.5\%$

TABLE 6.1 – Paramètres d’ajustement et la proportion β de graphite dans les échantillons de graphène épitaxié (Atlanta et Varsovie).

Graphène épitaxié d’Atlanta

- le signal provient majoritairement des fermions de Dirac sans masse (point **K** du graphène et **H** du graphite).
- l’échantillon présente une proportion $\beta \simeq 10\%$ d’inclusions de graphite.
- on note la présence d’une absorption (flèche grise sur la figure 6.4c) autour de 127 T. Cette absorption correspond à la transition interbande $LL_{-1,-2} \rightarrow LL_{2,1}$ du bicouche réel au point **K**. Le manque d’absorptions supplémentaires ne nous permet pas de mesurer précisément le paramètre $370\text{meV} < \gamma_1 < 390\text{meV}$ pour $v_F = 1.02 \times 10^6 \text{m.s}^{-1}$.
- on observe un léger clivage de la transition $LL_{-1,-2} \rightarrow LL_{1,2}$ du graphène (flèche violette sur la figure 6.4c). L’amplitude du clivage ramenée à la dépendance en racine carré, correspond à une valeur de 0.18meV.T^{-1} . Cette valeur est environ 20% plus petite que la valeur (0.23meV.T^{-1}) apportée par l’énergie cinétique d’un électron libre (voir chapitre 4).

Graphène épitaxié de Varsovie

- le signal provient majoritairement des fermions de Dirac sans masse (point **K** du graphène et **H** du graphite).
- l’échantillon présente une proportion $\beta \simeq 8\%$ d’inclusions de graphite.
- on note la présence de la même absorption (flèche grise sur la figure 6.4c) correspondant à la transition interbande $LL_{-1,-2} \rightarrow LL_{2,1}$ du bicouche réel au point **K**. Cette absorption semble plus importante et plus large. La proportion de bicouche réel dans cet échantillon semble plus important que dans le graphène d’Atlanta.
- on observe un clivage plus important et plus marqué de la transition $LL_{-1,-2} \rightarrow LL_{2,1}$ (flèche violette sur la figure 6.4c). L’amplitude du clivage apportée par l’énergie cinétique d’un électron libre (voir chapitre 4) ramenée à la dépendance en racine carré, correspond à une valeur de 0.28meV.T^{-1} . Cette valeur est environ 20% plus grande que la valeur calculée (0.23meV.T^{-1}).

6.2.3 Asymétrie de la transition interbande $0 \rightarrow 1$ et $1 \rightarrow 0$ dans le graphène

La mesure de l'asymétrie (électron-trou) dans le graphène est plus difficile à observer car son amplitude est plus faible que l'asymétrie au point **K** du graphite. La figure 6.5 montre les signaux de magnéto-transmission du graphite et du graphène épitaxié pour une énergie de 230 meV environ.

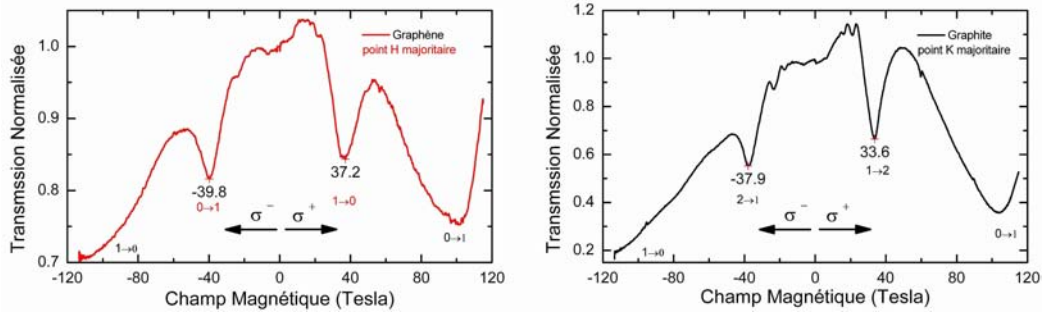


FIGURE 6.5 – Transmission normalisée et polarisée du graphène à 234.6 meV (rouge). Transmission normalisée d'un échantillon de graphite à 229 meV (noir).

On observe clairement une asymétrie sur les deux signaux. L'asymétrie atteint environ $\Delta B \simeq 4$ T pour le graphite et $\Delta B \simeq 2.5$ T pour le graphène. Même si les énergies entre les deux signaux ne sont pas égales (différence de 5 meV environ), l'asymétrie électron-trou prédite par le modèle **SWM** aux points **K** ($\Delta B_{SWM} \simeq 4.5$ T) et **H** ($\Delta B_{SWM} \simeq 2$ T) ne varie presque pas dans cette gamme d'énergie. Comme démontré précédemment, le signal est majoritairement constitué des transitions des fermions de Dirac avec masse (point **K** graphite) pour le graphite et majoritairement des fermions de Dirac sans masse (**K**-graphène, **H**-graphite) pour le graphène. On peut donc supposer que la différence en champ magnétique des transitions mesurées représente l'asymétrie du graphène. Toutefois, les transitions $1, 2 \rightarrow 2, 1$ au point **K** et $0, 1 \rightarrow 1, 0$ au point **H** du graphite aux alentours de 40 T étant quasi-confondues (voir figure 4.6) et la contribution des inclusions de graphite devenant majoritaire à fort champ (transition $0 \rightarrow 1$ au point **K**), rendent difficile l'attribution formelle de l'observation à l'asymétrie électron-trou du graphène. Un échantillon contenant moins d'inclusions de graphite permettra de mesurer précisément cette asymétrie.

6.3 Conclusion

Cette partie a illustré la forte intrication des propriétés du graphite et du graphène épitaxié.

- Pour les énergies étudiées ($E \gg \Delta$), les transitions au point **H** du graphite et au point **K** du graphène sont semblables.

- Les transitions interbandes dans le graphite, à température ambiante et à fort champ magnétique, ont majoritairement été observée au point **K** (fermions de Dirac avec masse).
- Le graphène épitaxié d'Atlanta a montré des inclusions non négligeables ($\sim 10\%$) de graphite et mêmes des inclusions de bicouches.
- L'asymétrie dans le graphène n'a pas été mise clairement en évidence mais reste compatible avec les prédictions du modèle **SWM** en incluant le terme de l'énergie cinétique d'un électron libre.
- Le graphène épitaxié de Varsovie a montré également des inclusions de graphite ($\sim 8\%$) mais plus de bicouches réels que pour le graphène d'Atlanta. L'observation d'un clivage plus important semble indiquer une meilleure mobilité dans cet échantillon.

Conclusion

Dans cette thèse, j'ai effectué un travail de mise en place du générateur Mégagauss au LNCMI puis l'optimisation d'une expérience de transmission optique dans le proche infrarouge (laser CO). Nous avons ensuite utilisé ce dispositif pour étudier la magnéto-transmission du graphite et du graphène dans une large gamme d'énergie (200 meV à 2 eV) jusqu'à 160 T. L'étude polarisée des transitions interbandes dans le graphite a permis de mettre en évidence l'existence d'une asymétrie électron-trou propre à la description d'un atome de carbone isolé liée à l'énergie cinétique de l'électron libre souvent négligée.

Cette observation a deux conséquences fondamentales pour l'étude des propriétés électroniques des composées mono et multi-feuillets de carbone :

- sans ce terme, la mesure des paramètres γ_4 et γ_5 du modèle **SWM** dans le graphite est sur-estimée.
- les bandes d'électrons et de trous sont asymétriques dans le graphène (point **H** du graphite).

L'étude des propriétés optiques du graphite à haute énergie a mis en évidence le comportement relativiste (fermions de Dirac) des électrons, sans masse au point **H**, en analogie avec le graphène et avec masse au point **K**, en analogie avec le graphène bicouche.

On considère ici la paire électron-trou comme une pseudo-particule ayant une énergie relativiste d'impulsion $E_{e-,trou} = E_{e-} + E_{trou} \simeq 2\sqrt{p^2v^2 + m^2v^4}$, d'énergie au repos $mv^2 = \gamma_1$ et de vitesse de Fermi moyenne v . Le très bon accord avec la relativité même à des énergies très grandes prouve que la trajectoire des électrons est très peu affectée par les défauts du cristal et les couplages inter-couches, même à température ambiante. De plus, la valeur mesurée du paramètre $\lambda = 2$ au point **K**, directement relié aux nombres de couches [Koshino 2008, Koshino 2009], prouve que le graphite naturel cristallin possède un empilement (AB) très bon sur des épaisseurs dépassant la vingtaine de couches. Ils seraient donc très intéressants d'étudier la réponse à des champs Mégagauss d'échantillons plus fins (3 à 10 couches) où il est prévu d'observer des valeurs particulières du paramètre lambda en fonction du nombre de couches ($\lambda = 1.41$ pour N=3, $\lambda = 0.62, 1.62$ pour N=4 ...). Le générateur Mégagauss pourrait être utilisée comme une sonde puissante dans la mesure de la qualité de l'empilement ABA et du nombre de couches contrairement aux techniques comme la microscopie à effet tunnel (STM) ou la spectroscopie Raman qui atteignent leur limite au niveau de la profondeur d'exploration et de la précision, respectivement, quant le nombre de couches dépassent 2 ou 3.

Le générateur Mégagauss est un outil très puissant permettant d'atteindre des champs supérieurs à 100 T avec un risque de destruction de l'échantillon minime. Cette installation donne au laboratoire toulousain une place internationale dans le domaine des champs magnétiques pulsés et est maintenant disponible pour des études optiques. Plusieurs défis sont maintenant envisageables tels que le développement d'une expérience de spectroscopie (en énergie) au moyen d'une impulsion large spectre (visible et proche infrarouge) ultra-courte et le développement de mesures de transport sans contact (TDO). Ils permettront d'élargir la gamme des matériaux mesurables.

Annexe

Modèle harmonique

Cette simplification ayant pour but l'analyse fréquentielle en $\frac{1}{B}$ part de l'expression des niveaux de Landau avec le modèle du bicouche effectif [Koshino 2008].

L'expression des niveaux de Landau s'écrit :

$$\varepsilon_{n,\mu,s} = \frac{s}{\sqrt{2}} \sqrt{(\lambda\gamma_1)^2 + (2n+1)\Delta_B^2 + \mu\sqrt{(\lambda\gamma_1)^4 + 2(2n+1)(\lambda\gamma_1)^2\Delta_B^2 + \Delta_B^4}} \quad (6.7)$$

où $s = \pm 1$, (-1 : bandes de valence, +1 : bandes de conduction) et $\mu = \pm 1$ (-1 : bandes inférieures (E_{3+}, E_{3-}), +1 : bandes supérieures (E_2, E_1)).

Par mesure de lisibilité et en considérant le point **K** ($\lambda = 2$), nous écrivons :

$$\Delta_B^2 = \alpha B = 2\hbar e \nu_F^2 B \lambda \gamma_1 = \Gamma \quad (6.8)$$

On peut écrire :

$$|\varepsilon_n| = \frac{s}{\sqrt{2}} \sqrt{\Gamma^2 + (2n+1)\alpha B \pm \sqrt{(\Gamma^4 + (4n+2)\Gamma^2\alpha B + (\alpha B)^2)}}$$

$$2\varepsilon_n^2 = \Gamma^2 + (2n+1)\alpha B \pm \sqrt{(\Gamma^4 + (4n+2)\Gamma^2\alpha B + (\alpha B)^2)}$$

On élève au carré :

$$(2\varepsilon_n^2 - \Gamma^2 - (2n+1)\alpha B)^2 = \Gamma^4 + (4n+2)\Gamma^2\alpha B + (\alpha B)^2$$

$$(4n^2 + 4n + 1 - 1)(\alpha B)^2 - ((4n+2)2\varepsilon_n^2 - (4n+2)\Gamma^2 + (4n+2)\Gamma^2)\alpha B$$

$$= \Gamma^4 - \Gamma^4 - 4\varepsilon_n^4 + 4\varepsilon_n^4\Gamma^2$$

$$\Rightarrow 4(n^2 + n)(\alpha B)^2 - 4(2n+1)\varepsilon_n^2\alpha B + 4(\varepsilon_n^4 - \varepsilon_n^2\Gamma^2) = 0 \quad (6.9)$$

On obtient une équation du second degré en αB , on peut trouver les solutions :

$$\alpha B = \frac{(n + \frac{1}{2})\varepsilon_n^2}{(n^2 + n)} \pm \sqrt{\frac{(n + \frac{1}{2})\varepsilon_n^4}{(n^2 + n)^2} - \frac{(\varepsilon_n^4 - \varepsilon_n^2\Gamma^2)}{(n^2 + n)}} \quad (6.10)$$

$$(n^2 + n)\alpha B = (n + \frac{1}{2})\varepsilon_n^2 \pm \Gamma\varepsilon_n(n^2 + n)^{\frac{1}{2}}(1 + \frac{\varepsilon_n^2}{4(n^2 + n)\Gamma^2})^{\frac{1}{2}} \quad (6.11)$$

Ce résultat est une valeur exacte. On peut faire des approximations, la première s'écrit :

$$(n^2 + n) \simeq n^2 + n + \frac{1}{4} = (n + \frac{1}{2})^2 \quad (6.12)$$

La deuxième concerne le terme $\frac{\varepsilon_n^2}{4(n^2+n)\Gamma^2}$. Ce terme est inférieur à 0.05 pour $E_{1,2}(n \geq 2)$ et inférieur à 0.005 pour $E_{3+,3-}(n \geq 3)$ pour des valeurs de champ jusqu'à 100 Tesla. On effectue un DL du premier ordre, en remplaçant le terme $(1 + \frac{\varepsilon_n^2}{4(n^2+n)\Gamma^2})^{\frac{1}{2}}$ par $(1 + \frac{\varepsilon_n^2}{8(n^2+n)\Gamma^2})$.

On peut maintenant écrire les valeurs en fonction de ε_n et ε_{n-1} :

$$(n^2 + n)\alpha B = (n + \frac{1}{2})\varepsilon_n^2 \pm \Gamma\varepsilon_n(n + \frac{1}{2})(1 + \frac{\varepsilon_n^2}{8(n^2 + n)\Gamma^2}) \quad (6.13)$$

$$(n^2 - n)\alpha B = (n - \frac{1}{2})\varepsilon_{n-1}^2 \pm \Gamma\varepsilon_{n-1}(n - \frac{1}{2})(1 + \frac{\varepsilon_{n-1}^2}{8(n^2 - n)\Gamma^2}) \quad (6.14)$$

On additionne les deux équations 6.13 et 6.14 :

$$2n^2\alpha B = n(\varepsilon_n^2 + \varepsilon_{n-1}^2) + \frac{(\varepsilon_n^2 - \varepsilon_{n-1}^2)}{2} \quad (6.15)$$

$$\pm \Gamma(n(\varepsilon_n + \varepsilon_{n-1}) + \frac{(\varepsilon_n - \varepsilon_{n-1})}{2}) \quad (6.16)$$

$$\pm \frac{1}{8\Gamma}(\frac{\varepsilon_n^3}{(n + \frac{1}{2})} + \frac{\varepsilon_{n-1}^3}{(n - \frac{1}{2})}) \quad (6.17)$$

$$2n^2\alpha B = n(\varepsilon_n^2 + \varepsilon_{n-1}^2) + \frac{(\varepsilon_n^2 - \varepsilon_{n-1}^2)}{2} \pm \Gamma(n(\varepsilon_n + \varepsilon_{n-1}) \quad (6.18)$$

$$+ \frac{(\varepsilon_n - \varepsilon_{n-1})}{2} \pm \frac{1}{8\Gamma}(\frac{n(\varepsilon_n^3 + \varepsilon_{n-1}^3) - n(\varepsilon_n^3 - \varepsilon_{n-1}^3)}{(n^2 - \frac{1}{4})}) \quad (6.19)$$

On fait un changement de variable pour isoler les transitions interbandes, $E = \varepsilon_n + \varepsilon_{n-1}$ et les transitions de résonance cyclotron, $\delta = \varepsilon_n - \varepsilon_{n-1}$. On peut exprimer :

$$\varepsilon_n^2 + \varepsilon_{n-1}^2 = (\frac{E + \delta}{2})^2 + (\frac{E - \delta}{2})^2 = \frac{E^2 + \delta^2}{2} \quad (6.20)$$

$$\varepsilon_n^2 - \varepsilon_{n-1}^2 = E\delta \quad (6.21)$$

$$\varepsilon_n^3 + \varepsilon_{n-1}^3 = \frac{E^3 + 3E\delta^2}{4} \quad (6.22)$$

$$\varepsilon_n^3 - \varepsilon_{n-1}^3 = \frac{3E^2\delta}{4} \quad (6.23)$$

On injecte 6.20,6.21,6.22,6.23 dans l'équation 6.19 :

$$2n^2\alpha B = \frac{nE}{2}(E^2 + \delta^2) + \frac{E\delta}{2} \pm \Gamma(nE + \frac{\delta}{2}) \pm \frac{1}{8\Gamma}(n^2 - \frac{1}{4})(\frac{nE^3}{4} - \frac{3E^3\delta}{8}) \quad (6.24)$$

On peut ignorer le terme δ^2 . On obtient :

$$2n\alpha B = \frac{E}{2}(E \pm 2\Gamma \pm \frac{E^2}{16n^2\Gamma}) + \frac{\delta}{n}(\frac{E}{2} \pm \frac{\Gamma}{2} \mp \frac{3E^2}{64\Gamma n^2}) \quad (6.25)$$

De même on simplifie 6.13-6.14 :

$$2n\alpha B = nE\delta + \frac{1}{2} \frac{E^2}{2} \pm \Gamma(n\delta + \frac{1}{2}E) \quad (6.26)$$

$$\pm \frac{1}{8\Gamma n^2} \left(\frac{3nE^2\delta}{4} - \frac{E^3}{8} \right) \quad (6.27)$$

On obtient le terme δ :

$$\delta = \frac{(E^2 \pm 2E\Gamma \pm \frac{3E^3}{16n^2\Gamma})}{4n((E \pm \Gamma)(1 - \frac{1}{2n^2}) \pm \frac{3E^2}{32n^2\Gamma})} \quad (6.28)$$

On considère juste le premier ordre que l'on remplace dans l'équation 6.24 :

$$n\alpha B = \left(\frac{E}{4} \pm \frac{E\Gamma}{2} \right) \left(1 + \frac{1}{4n^2} \right) \pm \frac{E^3}{64n^2\Gamma} \quad (6.29)$$

Liste des publications

Publications liées à la thèse

"Origin of electron-hole asymmetry in graphite and graphene"

Plochocka, P. and Solane, P. Y., Nicholas, R. J. and Schneider, J. M. and Piot, B. A. and Maude, D. K. and Portugall, O. and Rikken, G. L. J. A.
PHYSICAL REVIEW B **85**, 245410 (2012).

"Megagauss Study of the Relativistic Dispersion in Graphite",

Nicholas R. J., Solane P-Y., Portugall O.
En cours

Autre Publication

"High-field magnetospectroscopy to probe the 1.4-eV Ni color center in diamond"

Plochocka P., Portugall O., Solane P. Y., Gheeraert E., Ranno L., Bustarret E., Bruyant N., Breslavetz I., Maude D. K., Kanda H., Rikken G. L. J. A.
PHYSICAL REVIEW B **86**, 045203 (2012).

Bibliographie

- [Ando 2002] T. Ando, Y. Zheng et H. Suzuura. *"Dynamical Conductivity and Zero-Mode Anomaly in Honeycomb Lattices"*. Journal of the Physical Society of Japan, vol. 71, no. 5, pages 1318–1324, 2002. (Cité en page 41.)
- [Berger 2004] C. Berger, Z. Song, T. Li, X. Li, A. Y. Ogbazghi, R. Feng, Z. Dai, A. N. Marchenkov, E. H. Conrad, P. N. First et W. A. de Heer. *"Ultrathin Epitaxial Graphite : 2D Electron Gas Properties and a Route toward Graphene-based Nanoelectronics"*. The Journal of Physical Chemistry B, vol. 108, no. 52, pages 19912–19916, 2004. (Cité en page 43.)
- [Berger 2006] C. Berger, Z. Song, X. Li, X. Wu, N. Brown, C. Naud, D. Mayou, T. Li, J. Hass, A. N. Marchenkov, E. H. Conrad, P. N. First et W. A. de Heer. *"Electronic Confinement and Coherence in Patterned Epitaxial Graphene"*. Science, vol. 312, no. 5777, pages 1191–1196, 2006. (Cité en page 43.)
- [Bernal 1924] J. D. Bernal. *"The Structure of Graphite"*. Proc. R. Soc. Lond. A, vol. 106, pages 749–773, 1924. (Cité en page 52.)
- [Boyko 1998] B. A. Boyko, A. I. Bykov, M. I. Dolotenko, N. P. Kolokol'Chikov, I. M. Markevtsev, O. M. Tatsenko et A. M. Shuvalov. *"More than 20 MG Magnetic Field Generation in the Cascade Magnetocumulative MC-1 Generator"*. MEGAGAUSS MAGNETIC FIELD GENERATION, ITS APPLICATION TO SCIENCE AND ULTRA-HIGH PULSED-POWER TECHNOLOGY, pages 61–66, 1998. (Cité en page 3.)
- [Canali 1975] C. Canali, C. Jacoboni, F. Nava, G. Ottaviani et A. Alberigi-Quaranta. *"Electron drift velocity in silicon"*. Phys. Rev. B, vol. 12, pages 2265–2284, Sep 1975. (Cité en page 48.)
- [Castro Neto 2009] A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov et A. K. Geim. *"The electronic properties of graphene"*. Rev. Mod. Phys., vol. 81, pages 109–162, Jan 2009. (Cité en page 47.)
- [Chen 2008] J.-H. Chen, C. Jang, S. Xiao, M. Ishigami et M. S. Fuhrer. *"Intrinsic and extrinsic performance limits of graphene devices on SiO₂"*. Nat Nano, vol. 3, no. 4, pages 206–209, Avril 2008. (Cité en page 48.)
- [Chuang 2009] K.-C. Chuang, A. M. R. Baker et R. J. Nicholas. *"Magnetoabsorption study of Landau levels in graphite"*. Phys. Rev. B, vol. 80, page 161410, Oct 2009. (Cité en pages 61, 75, 86 et 87.)

- [Das Sarma 2011] S. Das Sarma, Shaffique Adam, E. H. Hwang et Enrico Rossi. "*Electronic transport in two-dimensional graphene*". Rev. Mod. Phys., vol. 83, pages 407–470, May 2011. (Cité en pages 47, 48 et 49.)
- [de Heer 2007] W. A. de Heer, C. Berger, X. Wu, P. N. First, E. H. Conrad, X. Li, T. Li, M. Sprinkle, J. Hass, M. L. Sadowski, M. Potemski et G. Martinez. "*Epitaxial graphene*". Solid State Communications, vol. 143, no. 1-2, pages 92 – 100, 2007. (Cité en page 44.)
- [Deacon 2007] R. S. Deacon, K.-C. Chuang, R. J. Nicholas, K. S. Novoselov et A. K. Geim. "*Cyclotron resonance study of the electron and hole velocity in graphene monolayers*". Phys. Rev. B, vol. 76, page 081406, Aug 2007. (Cité en page 61.)
- [Dresselhaus 1965] G. Dresselhaus et M. S. Dresselhaus. "*Spin-Orbit Interaction in Graphite*". Phys. Rev., vol. 140, pages A401–A412, Oct 1965. (Cité en pages 55 et 57.)
- [Dresselhaus 2012] Mildred S Dresselhaus. "*Fifty years in studying carbon-based materials*". Physica Scripta, vol. 2012, no. T146, page 014002, 2012. (Cité en page 47.)
- [Druzhinin 1995] V. V. Druzhinin, O. M. Tatsenko, A. I. Bykov, M. I. Dolotenko, N. P. Kolokol'chikov, Yu. B. Kudasov, V. V. Platonov, C. M. Fowler, B. L. Freeman, J. D. Goettee, J. C. King, W. Lewis, B. R. Marshall, B. J. Papatheofanis, P. J. Rodriguez, L. R. Veaser et W. D. Zerwekh. "*Nonlinear Faraday effect in CdS semiconductor in an ultrahigh magnetic field*". Physica B : Condensed Matter, vol. 211, no. 1-4, pages 392 – 395, 1995. Research in High Magnetic Fields. (Cité en page 27.)
- [Falkovsky 2011] L. A. Falkovsky. "*Quantum magneto-optics of graphite with trigonal warping*". Phys. Rev. B, vol. 84, page 115414, Sep 2011. (Cité en page 70.)
- [Faugeras 2008] C. Faugeras, A. Neri, M. Potemski, A. Mahmood, E. Dujardin, C. Berger et W. A. de Heer. "*Few-layer graphene on SiC, pyrolytic graphite, and graphene : A Raman scattering study*". Applied Physics Letters, vol. 92, no. 1, page 011914, 2008. (Cité en page 44.)
- [Goerbig 2011] M. O. Goerbig. "*Electronic properties of graphene in a strong magnetic field*". Rev. Mod. Phys., vol. 83, pages 1193–1243, Nov 2011. (Cité en page 47.)
- [Grüneis 2008a] A. Grüneis, C. Attaccalite, T. Pichler, V. Zabolotnyy, H. Shiozawa, S. L. Molodtsov, D. Inosov, A. Koitzsch, M. Knupfer, J. Schiessling, R. Follath, R. Weber, P. Rudolf, L. Wirtz et A. Rubio. "*Electron-Electron Correlation in Graphite : A Combined Angle-Resolved Photoemission and First-Principles Study*". Phys. Rev. Lett., vol. 100, page 037601, Jan 2008. (Cité en page 75.)
- [Grüneis 2008b] A. Grüneis, C. Attaccalite, L. Wirtz, H. Shiozawa, R. Saito, T. Pichler et A. Rubio. "*Tight-binding description of the quasiparticle dispersion of graphite and few-layer graphene*". Phys. Rev. B, vol. 78, page 205425, Nov 2008. (Cité en page 75.)

- [Hansel 2006] S. Hansel. *"Hysteresis in Optical Megagauss Spectroscopy"*. PhD thesis, Humboldt University, 2006. (Cité en pages 16 et 20.)
- [Heitzmann 1980] J. P. Heitzmann. "cages de faraday". 1980, 1980. (Cité en page 30.)
- [Henriksen 2008] E. A. Henriksen, Z. Jiang, L.-C. Tung, M. E. Schwartz, M. Takita, Y.-J. Wang, P. Kim et H. L. Stormer. *"Cyclotron Resonance in Bilayer Graphene"*. Phys. Rev. Lett., vol. 100, page 087403, Feb 2008. (Cité en page 61.)
- [Jaime 2012] M. Jaime, R. Daou, S. A. Crooker, F. Weickert, A. Uchida, A. E. Feiguin, C. D. Batista, H. A. Dabkowska et B. D. Gaulin. *"Magnetostriction and magnetic texture to 100.75 Tesla in frustrated SrCu₂(BO₃)₂"*. Proceedings of the National Academy of Sciences, vol. 109, no. 31, pages 12404–12407, 2012. (Cité en page 2.)
- [Kirste 2004] A. Kirste. *"Magnetization measurements in ultrahigh magnetic fields"*. PhD thesis, Humboldt-university, 2004. (Cité en page 26.)
- [Koshino 2008] M. Koshino et T. Ando. *"Magneto-optical properties of multilayer graphene"*. Phys. Rev. B, vol. 77, page 115313, Mar 2008. (Cité en pages 41, 56, 57, 66, 105 et 107.)
- [Koshino 2009] M. Koshino et T. Ando. *"Electronic structures and optical absorption of multilayer graphenes"*. Solid State Communications, vol. 149, no. 27-28, pages 1123 – 1127, 2009. (Cité en pages 82, 86, 94 et 105.)
- [Kuzmenko 2008] A. B. Kuzmenko, E. van Heumen, F. Carbone et D. van der Marel. *"Universal Optical Conductance of Graphite"*. Phys. Rev. Lett., vol. 100, page 117401, Mar 2008. (Cité en pages 41 et 42.)
- [Kuzmenko 2009] A. B. Kuzmenko, E. van Heumen, D. van der Marel, P. Lerch, P. Blake, K. S. Novoselov et A. K. Geim. *"Infrared spectroscopy of electronic bands in bilayer graphene"*. Phys. Rev. B, vol. 79, page 115441, Mar 2009. (Cité en page 61.)
- [Levallois 2012] J. Levallois, M. Tran et A. B. Kuzmenko. *"Decrypting the cyclotron effect in graphite using Kerr rotation spectroscopy"*. Solid State Communications, 2012. (Cité en page 75.)
- [Li 1998] L. Li et F. Herlach. *"Magnetic and thermal diffusion in pulsed high-field magnets"*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 31, no. 11, page 1320, 1998. (Cité en page 2.)
- [Li 2006] Z. Q. Li, S.-W. Tsai, W. J. Padilla, S. V. Dordevic, K. S. Burch, Y. J. Wang et D. N. Basov. *"Infrared probe of the anomalous magnetotransport of highly oriented pyrolytic graphite in the extreme quantum limit"*. Phys. Rev. B, vol. 74, page 195404, Nov 2006. (Cité en pages 61 et 70.)
- [Li 2007] Guohong Li et Eva Y. Andrei. *"Observation of Landau levels of Dirac fermions in graphite"*. Nat Phys, vol. 3, no. 9, pages 623–627, 2007. (Cité en pages 54 et 75.)

- [McCann 2006] E. McCann et V. I. Fal'ko. *"Landau-Level Degeneracy and Quantum Hall Effect in a Graphite Bilayer"*. Phys. Rev. Lett., vol. 96, page 086805, Mar 2006. (Cité en pages 56, 79 et 85.)
- [McClure 1960] J. W. McClure. *"Theory of Diamagnetism of Graphite"*. Phys. Rev., vol. 119, no. 2, pages 606–613, Jul 1960. (Cité en page 52.)
- [Miller 2003] J. R. Miller. *"The NHMFL 45-T hybrid magnet system : past, present, and future"*. Applied Superconductivity, vol. 13, no. 2, pages 1385–1390, Juin 2003. (Cité en page 1.)
- [Montgomery 1963] D Bruce Montgomery. *"The generation of high magnetic fields"*. Reports on Progress in Physics, vol. 26, no. 1, page 69, 1963. (Cité en page 12.)
- [Nair 2008] R. R. Nair, P. Blake, A. N. Grigorenko, K. S. Novoselov, T. J. Booth, T. Stauber, N. M. R. Peres et A. K. Geim. *"Fine Structure Constant Defines Visual Transparency of Graphene"*. Science, vol. 320, no. 5881, page 1308, 2008. (Cité en page 41.)
- [Nakao 1976] K. Nakao. *"Landau Level Structure and Magnetic Breakthrough in Graphite"*. Journal of the Physical Society of Japan, vol. 40, no. 3, pages 761–768, 1976. (Cité en pages 54, 55, 56, 61 et 63.)
- [Ohta 2006] T. Ohta, A. Bostwick, T. Seyller, K. Horn et E. Rotenberg. *"Controlling the electronic structure of bilayer graphene"*. Science, vol. 313, no. 5789, pages 951–954, 2006. (Cité en page 54.)
- [Orlita 2008] M. Orlita, C. Faugeras, G. Martinez, D. K. Maude, M. L. Sadowski et M. Potemski. *"Dirac Fermions at the H Point of Graphite : Magnetotransmission Studies"*. Phys. Rev. Lett., vol. 100, page 136403, Apr 2008. (Cité en page 54.)
- [Orlita 2009] M. Orlita, C. Faugeras, J. M. Schneider, G. Martinez, D. K. Maude et M. Potemski. *"Graphite from the Viewpoint of Landau Level Spectroscopy : An Effective Graphene Bilayer and Monolayer"*. Phys. Rev. Lett., vol. 102, page 166401, Apr 2009. (Cité en pages 54, 75, 85, 86 et 87.)
- [Orlita 2010] M Orlita et M Potemski. *"Dirac electronic states in graphene systems : optical spectroscopy studies"*. Semiconductor Science and Technology, vol. 25, no. 6, page 063001, 2010. (Cité en page 47.)
- [Orlita 2011] M. Orlita, C. Faugeras, J. Borysiuk, J. M. Baranowski, W. Strupinski, M. Sprinkle, C. Berger, W. A. de Heer, D. M. Basko, G. Martinez et M. Potemski. *"Magneto-optics of bilayer inclusions in multilayered epitaxial graphene on the carbon face of SiC"*. Phys. Rev. B, vol. 83, page 125302, Mar 2011. (Cité en page 44.)

- [Orlita 2012] M. Orlita, P. Neugebauer, C. Faugeras, A.-L. Barra, M. Potemski, F. M. D. Pellegrino et D. M. Basko. "*Cyclotron Motion in the Vicinity of a Lifshitz Transition in Graphite*". Phys. Rev. Lett., vol. 108, page 017602, Jan 2012. (Cité en page 70.)
- [Plochocka 2008] P. Plochocka, C. Faugeras, M. Orlita, M. L. Sadowski, G. Martinez, M. Potemski, M. O. Goerbig, J.-N. Fuchs, C. Berger et W. A. de Heer. "*High-Energy Limit of Massless Dirac Fermions in Multilayer Graphene using Magneto-Optical Transmission Spectroscopy*". Phys. Rev. Lett., vol. 100, page 087401, Feb 2008. (Cité en pages 43, 44 et 97.)
- [Portugall O. 1997] Müller H. U. Portugall O. Puhlmann N. et Al. "*The design and performance of a transportable low-cost instrument for the generation and application of megagauss fields*". J. Phys. D : Appl. Phys., vol. 30, pages 1697–1702, 1997. (Cité en page 1.)
- [Portugall O. 1999] Müller H. U. Barczewski M. Stolpe I. Portugall O. Puhlmann N. et Von Ortenberg M. "*Mega gauss magnetic field generation in single-turn coils : New frontiers for scientific experiments*". J. Phys. D : Appl. Phys., vol. 32, pages 2354–2366, 1999. (Cité en pages 1, 8, 13 et 15.)
- [S. Takeyama 2010] E. Kojima S. Takeyama H. Sawabe. "*Recent developments of the Electro-magnetic Flux Compression*". Journal of low temperature physics, vol. 159, no. 1-2, pages 328–331, 2010. (Cité en page 3.)
- [Sadowski 2006] M. L. Sadowski, G. Martinez, M. Potemski, C. Berger et W. A. de Heer. "*Landau Level Spectroscopy of Ultrathin Graphite Layers*". Phys. Rev. Lett., vol. 97, page 266405, Dec 2006. (Cité en page 75.)
- [Shannon 1998] C. E. Shannon. "*Communication in the presence of noise*". proceedings of the IEEE, vol. 86, pages 447–457, 1998. (Cité en page 17.)
- [Shearer 1969] J. W. Shearer. "*Interaction of capacitor bank produced Megagauss field with single turn coil*". J. Appl. Phys., vol. 40, no. 11, pages 4490–4497, Octobre 1969. (Cité en page 4.)
- [Shoenberg 1984] D. Shoenberg. "magnetic oscillations in metals". Cambridge University Press, 1984. (Cité en page 91.)
- [Skulason 2010] H S Skulason, P E Gaskell et T Szkopek. "*Optical reflection and transmission properties of exfoliated graphite from a graphene monolayer to several hundred graphene layers*". Nanotechnology, vol. 21, no. 29, page 295709, 2010. (Cité en page 42.)
- [Slonczewski 1958] J. C. Slonczewski et P. R. Weiss. "*Band Structure of Graphite*". Phys. Rev., vol. 109, no. 2, pages 272–279, Jan 1958. (Cité en page 52.)
- [Strupinski 2011] W. Strupinski, K. Grodecki, A. Wyszomolek, R. Stepniowski, T. Szkopek, P. E. Gaskell, A. Gruñeis, D. Haberer, R. Bozek, J. Krupka et J. M. Baranowski.

- "Graphene Epitaxy by Chemical Vapor Deposition on SiC"*. Nano Letters, vol. 11, no. 4, pages 1786–1791, 2011. (Cité en page 44.)
- [Takada 1998] Y Takada et H Goto. *"Exchange and correlation effects in the three-dimensional electron gas in strong magnetic fields and application to graphite"*. Journal of Physics : Condensed Matter, vol. 10, no. 49, page 11315, 1998. (Cité en page 70.)
- [Tung 2011] L.-C. Tung, P. Cadden-Zimansky, J. Qi, Z. Jiang et D. Smirnov. *"Measurement of graphite tight-binding parameters using high-field magnetorefectance"*. Phys. Rev. B, vol. 84, page 153405, Oct 2011. (Cité en pages 61 et 75.)
- [Ubrig 2011] N. Ubrig. *"Optical Properties of Carbon Based Materials in High Magnetic Field"*. PhD thesis, Université Paul Sabatier, 2011. (Cité en pages 62, 63, 64, 75 et 93.)
- [Varchon 2008] F. Varchon. *"Propriétés électroniques et structurales du graphène sur carbure de silicium"*. PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2008. (Cité en page 43.)
- [Wallace 1947] P. R. Wallace. *"The Band Theory of Graphite"*. Phys. Rev., vol. 71, no. 9, pages 622–634, May 1947. (Cité en pages 47, 48, 49, 52, 68 et 75.)
- [Y Shimamoto 1998] N Miura Y Shimamoto et H Nojir. *"Magnetic-field-induced electronic phase transitions in semimetals in high magnetic fields"*. Journal of Physics : Condensed Matter, vol. 10, page 11289, 1998. (Cité en pages 69, 70, 71 et 72.)
- [Yaguchi 1998] H. Yaguchi et J. Singleton. *"Destruction of the Field-Induced Density-Wave State in Graphite by Large Magnetic Fields"*. Phys. Rev. Lett., vol. 81, pages 5193–5196, Dec 1998. (Cité en pages 70, 71 et 72.)
- [Zhang 2008] L. M. Zhang, Z. Q. Li, D. N. Basov, M. M. Fogler, Z. Hao et M. C. Martin. *"Determination of the electronic structure of bilayer graphene from infrared spectroscopy"*. Phys. Rev. B, vol. 78, page 235408, Dec 2008. (Cité en page 61.)

Auteur : Pierre-Yves SOLANE

Titre : *Spectroscopie Optique du Graphite et du Graphène sous Champ Mégagauss*

Directeurs de Thèse : Geert RIKKEN et Oliver PORTUGALL

Spécialité : Physique de la matière

Lieu et Date de soutenance : 10/12/2012 au LNCMI (salle séminaire)

Laboratoire : Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses-UPR3228

143 Avenue de Rangueil – 31400 Toulouse

Résumé :

La découverte expérimentale du graphène (monocouche de graphite) en 2004 a provoqué un grand engouement dans la communauté scientifique. Cela a également renouvelé l'intérêt pour l'étude du graphite. Les propriétés de ces deux matériaux ont largement été étudiées par le biais de différentes techniques expérimentales (transport, optique...). Dans cette thèse nous démontrons que les mesures de transmission effectuées sous champ magnétiques très intenses (> 1 millions de fois le champ magnétique terrestre) sont un outil très puissant pour étudier la structure électronique du graphène et du graphite.

Dans un premier temps, nous montrerons que l'asymétrie électron-trou dans le graphite est causée par le terme souvent négligé de l'énergie cinétique d'un électron libre. Ce terme, également présent dans l'Hamiltonien décrivant les propriétés électroniques du graphène, explique élégamment l'asymétrie électron trou qui y est observée.

Deuxièmement, l'utilisation de nombreuses sources dans l'infrarouge et dans le visible (200meV à 2eV) nous a permis d'observer de grandes séries de transitions interbandes dans le graphite entre les quatre bandes (E_{3+} , E_{3-} , E_1 et E_2) jusqu'à 150 T et à température ambiante. La résonance au point K peut être parfaitement décrite avec le modèle du bicouche effectif et la résonance au point H correspond à celle d'une monocouche de graphène.

Enfin, nous démontrerons que ces résonances peuvent être réduites à une simple mesure de la relation de dispersion décrite par la formule relativiste $E^2 = m_0^2 v^4 + p^2 v^2$, avec v la vitesse de Fermi et, où l'énergie d'une particule au repos $m_0 v^2$ est égale à 385 meV au point K et est nulle au point H.

Mots-clés : *Spectroscopie optique, Graphite, Graphène, Champ magnétique, Mégagauss, Fermions de Dirac, Relativité, Asymétrie électron-trou.*

Author : Pierre-Yves SOLANE

Title : *Optical Spectroscopy of Graphite and Graphene under Megagauss Magnetic Field*

Supervisors : Geert RIKKEN et Oliver PORTUGALL

Laboratory : Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses-UPR3228

143 Avenue de Rangueil – 31400 Toulouse

Abstract :

Since its experimental discovery in 2004, graphene (a single layer of graphite) has attracted a lot of attention. It also leads to a renewed interest in graphite. Subsequently, both these materials have extensively been studied using different experimental techniques. In this thesis we demonstrate that transmission measurements performed in extremely high magnetic field (> 1 million times the earth's magnetic field) are a very useful tool to investigate the electronic structure of graphene and graphite. In particular, we will demonstrate that electron-hole asymmetry in graphite is caused by the often neglected free-electron kinetic energy term. This term is also present in the Hamiltonian describing electronic properties of graphene, hence it will lead to an asymmetry in graphene. Additionally, using near-infrared and visible sources from 200meV to 2eV we observe strong series of interband transitions in graphite between the four interlayer split bands (E_{3+} , E_{3-} , E_1 and E_2) up to 150 T at room temperature. The K-point electron resonances can be described well using an effective bilayer graphene model and the H-point transitions correspond to monolayer graphene. It is demonstrated that this can be reduced to a single measurement of the dispersion relation which is described by the relativistic formula where $E^2 = m_0^2 v^4 + p^2 v^2$ with v the Fermi velocity and a single particle rest energy $m_0 v^2$ of 385 meV for the K-point electrons and zero as expected for the H-point.

Keywords : *Optical spectroscopy, Graphite, Graphene, Magnetic Field, Megagauss, Dirac Fermions, Relativity, Electron-hole asymmetry.*
